



Interaction ions-surfaces : étude de la pulvérisation du fluorure de lithium LiF par technique d'imagerie XY-TOF-SIMS

Hussein Hijazi

► To cite this version:

Hussein Hijazi. Interaction ions-surfaces : étude de la pulvérisation du fluorure de lithium LiF par technique d'imagerie XY-TOF-SIMS. Physique [physics]. Université de Caen, 2011. Français. NNT : . tel-00634553

HAL Id: tel-00634553

<https://theses.hal.science/tel-00634553>

Submitted on 21 Oct 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE de CAEN BASSE-NORMANDIE



U.F.R des Sciences
Ecole Doctorale SIMEM



THESE

Présentée par

Mr Hussein HIJAZI

et soutenue

le 06 octobre 2011

En vue de l'obtention du

DOCTORAT de l'UNIVERSITÉ de CAEN

Spécialité : Milieux denses, Matériaux et Composants

Arrêté du 07 Août 2006

Interaction ions-surfaces : étude de la pulvérisation du fluorure de lithium LiF par technique d'imagerie XY-TOF-SIMS



MEMBRES du JURY

Mr. Denis Dauvergne, Directeur de recherches CNRS– Lyon (rapporteur)

Mr. Bruno Manil, Professeur des Universités – Paris (rapporteur)

Mr. Lamri Adoui, Professeur des Universités – Caen (président du jury)

Mme. Christina Trautmann, Senior Scientist, GSI – Darmstadt

Mr. Philippe Boduch, Maître de conférences – Caen

Mr. Hermann Rothard, Directeur de recherches CNRS – Caen (directeur de thèse)

Remerciements

Cette thèse a été effectuée au Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique (CIMAP) à Caen, dans le cadre d'un cofinancement C.E.A - région Basse Normandie. Je remercie Monsieur Serge Bouffard, directeur du CIMAP, de m'avoir accueilli au sein de ce laboratoire.

Je voudrais remercier vivement tous les membres du jury, Mme Christina Trautmann, Mr Denis Dauvergne, Mr Bruno Manil et Mr Lamri Adoui d'avoir accepté de rapporter et examiner ce travail.

Je tiens à remercier infiniment mon directeur de thèse Hermann Rothard et mon co-directeur Philippe Boduch, qui m'ont accueilli dans leur équipe pour faire cette thèse. Je voudrais les remercier de m'avoir épaulé et d'avoir enrichi mes connaissances scientifiques et expérimentales. Je les remercie également pour la confiance qu'ils m'ont accordée, et le temps consacré pour discuter des résultats et avancer la rédaction de la thèse et des articles. Et finalement je le remercie de m'avoir supporté pendant ces trois ans !

Ce travail a été réalisé en collaboration avec l'université Pontificia Universida de Católica do Rio de Janeiro (PUC-Rio), dans le cadre de projet CAPES/COFECUB. J'exprime ma profonde gratitude à toute l'équipe brésilienne dans le cadre de notre collaboration. Je remercie surtout Enio Forta da Silveira, Lucio Farenzena et Pedro Grande pour les expériences, réalisées au Van de Graaff à Rio, et les discussions riches en informations scientifiques que nous avons partagées. Je remercie aussi C.R. Ponciano de nous avoir préparé les échantillons. Je remercie infiniment Christian Mejia et ses collègues de m'avoir accueilli dans leur appartement lors de mon séjour à Rio de Janeiro.

Je remercie tous les membres de notre équipe MADIR. J'exprime en particulier ma gratitude à son responsable Emmanuel Balanzat et à Marcel Toulemonde pour leur écoute et les conseils scientifiques qu'ils m'ont apportés durant cette thèse.

Je tiens également à remercier Amine Cassimi pour son aide et sa disponibilité, ainsi que ses précieuses remarques afin d'améliorer la qualité du système de détection et d'acquisition.

Je tiens à remercier Ibrahim Alzaher. Ensemble, nous avons réussi à monter et à faire fonctionner le dispositif expérimental et à améliorer le programme d'acquisition.

Je remercie Benoît Gervais et Eric Giglio de leur disponibilité, pour avoir discuté avec moi, pour avoir effectué des calculs et pour avoir répondu avec patience à mes questions de théoricien naïf.

Un grand remerciement à Frédéric Ropars pour m'avoir aidé et pour sa disponibilité pour faire fonctionner l'acquisition et l'électronique associée. Je remercie également Francis Levesque pour ses conseils informatiques.

Ce travail n'aurait bien évidemment pas pu se dérouler sans l'aide et le soutien du personnel technique et administratif ainsi que des chercheuses et chercheurs. Je tiens à remercier particulièrement JeanMarc Ramillon, Thierry Been, Patrick Guinement, Toiammou Madi, Daniel Hennecart, Florent Durantel et Stéphane Guillous pour leur aide. Je remercie également les gens de l'acquisition du Ganil, en particulier Luc Legeard et Luigi Martina.

Je voudrais remercier vivement Linda De Baeremaker, Delphine Hasley et Sandrine Soro pour leur capacité à aplanir toute difficulté administrative et leur grande efficacité.

Je tiens à remercier Chantal Brassy "responsable de formation" de m'avoir m'inscrit aux cours d'anglais et de français à l'université pour chaque semestre.

Je remercie Lamri Adoui le responsable de l'école doctorale SIMEM qui m'a toujours encouragé, soutenu et aussi pour sa patience, qui a réussi me supporter pendant trois ans, surtout en ce qui concerne les attestations administratives !

Je voudrais remercier tous mes collègues de l'équipe AMA pour leur gentillesse et leur soutien. Je voudrais remercier en particulier Patrick Rousseau, Alicja Rousseau, Michaël Capron, Rémi Maisonne, Alain Mery, Jimmy Rangama, Jean Christophe Pouilly, Elie Lattouf pour toutes leurs amitiés, leurs discussions et de la bonne ambiance avec eux.

Je tiens à remercier également tous les thésards de l'équipe MADIR. Je remercie surtout Thomas Langlinay, Aude Ventura, Pierre Salou, Mamour Sall pour toutes leurs amitiés et je leur souhaite bon courage et bonne souffrance pour leurs thèses !

Je souhaite adresser des remerciements à tous mes amis à Caen, pour leurs encouragements et leur soutien pendant mes années de thèse, et pour les bons moments qu'on a partagés. Je remercie plus particulièrement mon frère le Chef Khalil Hijazi et je lui souhaite une bonne continuation et bon courage dans son restaurant "Al Wadi" à CAEN. Je tiens à remercier Ali Moawia, Hussein El Seblani, Nabil Tahhan, Ziad None, Ziad Damaj, Bassem Fahess et sa fiancée.

Je remercie la Cité U Lebissey où j'ai vécu depuis mon arrivé à Caen. Je tiens à remercier son équipe de musculation.

Finalement, je remercie ma mère, mon père, mes deux soeurs et mes huit frères qui m'ont soutenu et encouragé pour continuer mes études supérieures en France, avec qui j'ai partagé les bons et les mauvais moments et qui sont restés en contact avec moi pendant toute cette période.

Interaction ions-surfaces : étude de la pulvérisation du fluorure de lithium LiF par technique d'imagerie XY-TOF-SIMS

Table des Matières

Chapitre 1 : Introduction	9
Chapitre 2 : Interaction ions lourds-matière	15
Introduction	17
A - Perte d'énergie du projectile	17
I. Le pouvoir d'arrêt dE/dx d'une particule chargée dans la matière et le parcours R_p	18
II. Diffusion de Rutherford	20
III. Calcul de la perte d'énergie due aux chocs coulombiens.....	21
IV. Pouvoir d'arrêt nucléaire ou collisions élastiques.....	22
V. Pouvoir d'arrêt électronique ou collisions inélastiques.....	22
V.1 Régime des grandes vitesses $v_I \gg Z_I^{2/3} v_0$ ($\ll c$, non relativiste)	23
V.2 Régime des vitesses intermédiaires $v_I \approx Z_I^{2/3} v_0$	24
V.3 Régime des basses vitesses $v_I \ll Z_I^{2/3} v_0$	24
VI. Comparaison entre la perte d'énergie électronique et nucléaire	25
B – Pulvérisation par impact d'ion ; état des connaissances	26
I. Pulvérisation induite par ralentissement nucléaire.....	27
I.1 Régime de collision simple	27
I.2 Régime de cascade linéaire	28
I.3 Régime de cascade non linéaire ; régime de pointe	30
I.4 Résultats expérimentaux	31
II. Pulvérisation induite par ralentissement électronique.....	32
II.1 Modèles de la pointe thermique	33
II.2 Modèle de l'explosion coulombienne	36
II.3 Modèle de l'onde de choc et de l'impulsion de pression	36
II.4 Modèle de désorption par migration de défauts	38

II.5	Résultats expérimentaux de pulvérisation électronique	42
II.5.a	Les rendements de pulvérisation en fonction du S_e	42
II.5.b	Evolution des rendements de pulvérisation en fonction de δ	46
II.5.c	Les distributions en énergie.....	47
II.5.d	Les distributions angulaires.....	48
Conclusion.....		50
 Chapitre 3 : Dispositif expérimental.....		51
Introduction		53
A -	Production des ions projectiles.....	53
I.	Le GANIL	53
II.	Aire expérimentale D1	54
B -	Chambre d'irradiation	55
I.	Système Ultra-Vide AODO	57
II.1	Préparation des cibles de LiF monocristallin-polycristallin.....	58
II.	Le spectromètre du temps de vol (TOF) et des positions (XY)	58
II.1	Détecteur des ions secondaires.....	58
II.2	Extraction des ions secondaires.....	59
II.3	Détection des ions et amplification du signal.....	60
II.4	Efficacité des galettes à micro-canaux	61
II.5	Temps de vol TOF (Time Of Flight).....	62
II.6	Localisations des ions : Anode à lignes à retard	63
III.	Electronique de détection et le système d'acquisition	65
IV.	Traitement avec le programme ROOT et C^{++}	68
C-	Système du temps de vol (Van de Graaff – PUC-Rio de Janeiro)	69
I.	Introduction	69
II.	Faisceaux délivrés par l'accélérateur Van de Graaff	70
III.	Fragments de fissions et PDMS	70
IV.	Dispositif expérimental	71
V.	Préparation de cible LiF polycristalline	71
D-	Analyse des données : principe et étalonnage.....	73
I.	Introduction	73
II.	Etude de la ligne de gaz.....	73

III.	Etalonnage en position X et Y	75
III.a	Détermination de l'origine en position X_0 et Y_0	75
III.b	Etalonnage en mètre de "l'image du détecteur"	76
IV.	Etalonnage en temps de vol et en masse :	77
IV.a	Détermination de l'origine en temps TOF_0 ($v_{0z} = 0$)	77
V.	Calcul des composantes du vecteur vitesse	79
VI.	Incertitudes des paramètres X, Y et TOF	81
 Chapitre 4 : Résultats sur les		85
distributions en masse		85
Introduction		87
IV. Distribution en Masse		88
IV.1	Expériences réalisées avec des Fragments de Fissions (irradiation à Rio)	89
IV.2	Rendements de production des agrégats $(LiF)_nLi^+$ en fonction de n : comparaison entre LiF polycristallin préparés "in-situ" et "ex-situ" (irradiation au GANIL)	93
IV.3	Effet de la préparation et du contrôle des surfaces : comparaison pour LiF monocristallin entre surface non traitée et préparée (irradiation au GANIL)	95
IV.4	Expériences réalisées avec des ions lourds (SME-GANIL)	97
II.4.1.	Ions secondaires positifs	97
IV.5	Expériences VDG (Van de Graaff-Rio)	102
IV.5.1.	Ions secondaires positifs	102
IV.5.2.	Ions secondaires négatifs	103
IV.6	Multiplicité et perte d'énergie	105
 Chapitre 5 : Rendements de production des ions secondaires		109
Introduction		111
V. Le rendement total des ions secondaires		111
V.1	Rendement en fonction de la taille n de l'agrégat : $Y=f(n)$	111
V.2	Rendements des agrégats en fonction de l'épaisseur du LiF (SME-GANIL)	119
V.2.1	Bilan	123
V.3	Rendement en fonction de n : comparaison entre ions positifs et ions négatifs (FF)	124
V.4	Rendement en fonction de la perte d'énergie électronique S_e : $Y=f(S_e)$ (GANIL)	125
V.5	Rendement des agrégats en fonction de la charge q du N^{q+} (VDG)	129

V.6 Rendement en fonction de l'angle d'incidence δ : $Y=f(\delta)$	131
Chapitre 6 : Distributions en énergie et en angle des ions secondaires.....	135
Introduction	137
VI.1 Imagerie : détermination des positions X et Y en fonction du temps de vol TOF.....	137
VI.1.1 Etude de la position Y en fonction du temps de vol : $Y=f(\text{TOF})$	137
VI.1.2 Etude de la position X en fonction du temps de vol : $X=f(\text{TOF})$	140
VI.2 Distributions en énergie	142
VI.2.1 Distribution en énergie du monomère ${}^7\text{Li}^+$ et du premier agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$	142
VI.2.1.a L'évolution des distributions en énergie en fonction de S_e	142
VI.2.1.b L'évolution de distribution en énergie en fonction de δ	145
VI.2.2 Comparaison des distributions entre ${}^7\text{Li}^+$ et $(\text{LiF})\text{Li}^+$	147
VI.2.3 Modèle simple de l'explosion coulombienne.....	154
VI.2.4 Application et comparaison de $N(E)$	156
VI.3 Distributions angulaires.....	159
VI.3.1 Distribution angulaire du monomère ${}^7\text{Li}^+$	159
VI.3.1.a L'évolution de la distribution angulaire en fonction de S_e et de δ	160
VI.3.2 Distributions angulaires du monomère ${}^7\text{Li}^+$ et des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$	163
VI.3.4 Distribution angulaire : dépendance en $(\cos\theta)^n$	166
VI.3.5 Comparaison ions - neutres	167
Conclusion et perspectives.....	171
Annexes	175
Expression du temps de vol (TOF) de la ligne de gaz	177
Expression du temps de vol TOF des ions secondaires	179
Calcul du vecteur vitesse.....	181
Technique du "catcher"	183
CASP	184
Explosion Coulombienne pour les forts S_e	185
Bibliographies.....	186

Chapitre 1 : Introduction

Introduction

Lorsqu'un ion multichargé entre en collision avec une surface, il dépose de l'énergie sur les électrons et les noyaux de la cible solide. Cette dernière est alors localement et intensément excitée. La relaxation de l'énergie déposée peut notamment se traduire par une modification de la surface. Les effets induits par les ions multichargés peuvent donc être utilisés comme "outils" permettant de structurer la surface des matériaux à l'échelle nanométrique ("nano structuration"). Cependant, du point de vue fondamental, la relaxation de l'énergie déposée par l'ion incident est un processus qui est loin d'être compris. L'étude des particules pulvérisées provenant de la zone fortement perturbée du solide représente une signature du dépôt d'énergie et de la relaxation de celui-ci. Le but de ma thèse est d'étudier les ions secondaires pulvérisés. Il est possible d'obtenir les distributions en masse et en vitesse à l'aide d'un dispositif mesurant à la fois le temps de vol ("Time Of Flight", TOF) et la localisation (XY) de ces ions pulvérisés. Il s'agit de la technique d'imagerie dite "XY-TOF-SIMS" ("Secondary Ion Mass Spectrometry", SIMS). Les données expérimentales permettront ensuite de tester, valider et affiner des modèles théoriques. Par exemple, l'étude des distributions en vitesse permettra de tester des modèles comme la pointe thermique ou l'explosion coulombienne.

Pour la cible, plusieurs matériaux sont en cours d'étude (UO_2 comme matériau du nucléaire et le LiF en tant qu'isolant cristallin "modèle"). La pulvérisation produit majoritairement des espèces neutres. A l'aide de la technique dite du "catcher" (collecteur) [Assmann 2007, Toulemonde 2003, Toulemonde 2002], les rendements totaux, ainsi que les distributions angulaires ont été déterminés pour ces deux matériaux [Haranger 2006, Toulemonde 2003, Toulemonde 2002].

Différentes expériences ont été réalisées avec une cible de dioxyde d'uranium (UO_2) dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique ($\approx \text{MeV/u}$) [Bouffard 1998, Schlutig 2001] sur la ligne SME du GANIL, et avec des ions fortement chargés de faible énergie ($\approx \text{qkeV}$) [Haranger 2006, Boudjadar 2005] sur ARIBE. Dans ces expériences, les distributions angulaires des neutres émis (technique "catcher") ou bien le spectre de masse des ions secondaires ("Time-Of-Flight", TOF) [Boudjadar 2005] ont été mesurés. Pour aller plus loin et notamment pour obtenir des informations sur la dynamique de la relaxation du dépôt d'énergie à l'échelle microscopique, il

semble utile d'appliquer les techniques d'imagerie (XY-TOF), afin de déterminer les distributions en masse, en énergie et en angle des ions pulvérisés [Lenoir 2007].

Au cours de cette thèse, menée au Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique (CIMAP) à Caen et en collaboration avec l'université Pontifícia Universidade de Católica do Rio de Janeiro (PUC-Rio), nous avons étudié la pulvérisation de fluorure de lithium LiF, (isolant cristallin "modèle" à gap très important ≈ 14 eV), induite par des ions : (i) lourds rapides du GANIL (Caen), (ii) de l'accélérateur du Van de Graaff et (iii) du PDMS ("Plasma Desorption Mass Spectrometer") [Macfarlane 1976] de l'université PUC-Rio.

Pour cela, nous avons construit un nouveau dispositif expérimental (AODO) [Hijazi 2011, Akcöltekin 2009]. Il est constitué d'une chambre d'irradiation avec un détecteur XY-TOF, d'une chambre de préparation et d'une barre de transfert entre les deux chambres à ultravide (UHV). Ce système nous permet d'étudier la pulvérisation avec des surfaces contrôlées et préparées, c'est-à-dire propres et sans pollution surfacique telle que les hydrocarbures (C_xH_y).

Tout d'abord, nous décrirons dans le deuxième chapitre l'interaction ions lourds-matière. Nous y ferons alors le point sur les connaissances actuelles de l'interaction ion-matière ainsi que sur les paramètres importants à prendre en compte lors de notre étude.

La description de la technique d'analyse utilisée pour effectuer ce travail fera l'objet du troisième chapitre. Nous présenterons le fonctionnement de spectromètre XY-TOF sur la ligne SME du GANIL et le système de TOF sur l'accélérateur Van de Graaff de Rio de Janeiro. Nous terminerons ce chapitre par l'étude de la méthode de la "ligne de gaz" qui permet d'étalonner le système de mesures en temps et en positions ainsi la vérification des paramètres expérimentaux.

Dans le quatrième chapitre, nous présenterons les résultats expérimentaux obtenus sur la ligne SME-GANIL (Caen) et sur l'accélérateur Van de Graaff (Rio). Nous montrerons les distributions en masse des ions secondaires émis de LiF pour différents projectiles. Nous démontrerons le rôle important de la préparation de l'échantillon (surface propre).

Dans le cinquième chapitre, nous nous intéresserons aux rendements de production des ions secondaires. Nous étudierons l'évolution des rendements de ces agrégats $(LiF)_nLi^+$ en fonction : 1) de la taille n de l'agrégat, 2) du pouvoir d'arrêt électronique S_e , 3) de l'angle d'incidence δ et 4) de l'état de la charge q du projectile. Nous présenterons aussi l'évolution des rendements de production des agrégats en fonction de l'épaisseur de la cible de LiF évaporée en

couches minces. La comparaison des rendements de production des agrégats positifs $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ avec ceux des agrégats négatifs $(\text{LiF})_n\text{F}^-$ sera également présentée dans ce chapitre.

Dans la première partie du sixième chapitre, nous présenterons des spectres bidimensionnels des positions X et Y en fonction du temps de vol TOF. Dans la deuxième partie, nous étudierons et comparerons l'évolution des distributions en énergie des ions secondaires (monomère $^7\text{Li}^+$ et agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$) en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S_e et de l'angle d'incidence δ . Nous développerons ensuite un modèle théorique simple de l'explosion coulombienne. Nous appliquerons ce modèle et le comparerons à d'autres modèles théoriques et des distributions existants (exemples : le modèle de la cascade, la distribution de Maxwell-Boltzmann) sur les distributions en énergie des ions secondaires. Dans la troisième partie, nous présenterons les distributions angulaires des ions secondaires (monomère/agrégats). Nous terminerons ce chapitre en comparant les distributions angulaires des ions secondaires avec celles des neutres [Assmann 2007, Toulemonde 2003, Toulemonde 2002].

Chapitre 2 : Interaction ions lourds-matière

Introduction

Ce premier chapitre concerne les connaissances sur la réponse d'un solide au passage d'un ion rapide. Il est formé de deux parties :

En première partie, nous faisons des rappels généraux sur le processus de perte d'énergie des ions dans la matière condensée.

En deuxième partie, nous décrivons l'endommagement ou la création des défauts dans des solides et la pulvérisation des particules à partir de leur surface sous l'irradiation. Nous présentons les aspects expérimentaux et théoriques.

A - Perte d'énergie du projectile

Si nous négligeons les réactions nucléaires qui, pour les ions considérés, ont des sections efficaces trop faibles pour apporter une contribution notable à l'endommagement, nous pouvons dire que deux mécanismes fondamentaux décrivent l'interaction de l'ion incident dans la matière.

- Les collisions "élastiques" ou interactions coulombiennes directes entre la particule incidente et les noyaux de la cible.
- Les collisions "inélastiques" ou interactions avec les électrons de la cible.

A basse énergie (≈ 1 keV/u), le ralentissement de l'ion est essentiellement de nature "élastique". En revanche, il est essentiellement de nature "inélastique" à haute énergie (> 100 keV/u), avec un maximum appelé "pic de Bragg" (voir § A-V.2). Il est localisé aux environs de 0.15 MeV/u (pour les protons) à 5 MeV/u (pour l'uranium). Dans cette étude, compte tenu de l'énergie des ions (supérieure à 0.1 MeV/u), c'est donc essentiellement le domaine des collisions "inélastiques" qui nous intéresse.

Il existe plusieurs grandeurs qui nous permettent de quantifier le dépôt d'énergie dans la matière :

(1) Le pouvoir d'arrêt $S = - (dE/dx)$ qui dépend des sections efficaces des collisions élastiques et inélastiques.

(2) Le parcours de l'ion dans la matière (R_p) qui dépend de la vitesse de l'ion et du pouvoir arrêt S .

(3) Le flux (Φ) représentant le nombre de particules incidentes envoyées sur la cible, par unité de surface et par unité de temps ($\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$).

(4) La fluence (F) correspondant au nombre total de particules reçues par la cible par unité de surface (ions/cm^2) : $F = \int_0^t \phi dt$, t étant le temps total d'irradiation exprimé en seconde.

I. Le pouvoir d'arrêt dE/dx d'une particule chargée dans la matière et le parcours R_p

Afin de rendre compte du ralentissement d'un projectile dans la matière, nous utilisons une grandeur statistique, le pouvoir d'arrêt S , défini comme l'énergie perdue par la particule traversant une épaisseur de matière $- (dE/dx)$, la relation liant les deux grandeurs est la suivante :

$$S = - \frac{dE}{dx}$$

Le pouvoir d'arrêt S s'exprime couramment en keV/nm, ou en $[\text{MeV}/(\text{mg}/\text{cm}^2)]$ (souvent en physique nucléaire), ce qui correspond à $\frac{dE}{d(\rho x)}$, ρ étant la densité massique du matériau. Le pouvoir d'arrêt est donc une caractéristique du milieu traversé d'une part (la densité électronique de la cible, la structure de bandes...), et des particules projectiles d'autre part (l'énergie de l'ion projectile E_1 , l'état de charge q_1 , le nombre atomique Z_1 , la masse M_1 , états excités...).

Selon le processus collisionnel considéré, interactions inélastiques ou élastiques, le pouvoir d'arrêt électronique et le pouvoir d'arrêt nucléaire sont respectivement définis. Le pouvoir d'arrêt (ou la perte d'énergie) par unité de longueur dans la cible, est obtenu en sommant les pouvoirs d'arrêt nucléaire (n) et électronique (e) :

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_t = \left. \frac{dE}{dx} \right|_e + \left. \frac{dE}{dx} \right|_n$$

Le pouvoir d'arrêt total (t) permet d'évaluer le parcours réel de l'ion projectile dans la matière. Au cours de l'interaction, la vitesse de l'ion incident diminue et, à l'arrêt, l'ion se trouve piégé dans la matière (implantation). Il est possible de déterminer le parcours R_p de l'ion le long de sa trajectoire dans la cible, donné par la relation :

$$R_p = \int_0^{E_i} \left(\frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE \quad (\text{II-1})$$

E_i représente l'énergie cinétique initiale de la particule à son entrée dans le milieu. Le parcours projeté représente la projection du parcours de l'ion sur la direction initiale de la particule.

La figure II-1 montre l'évolution du parcours projeté de divers ions dans le LiF en fonction de l'énergie du projectile.

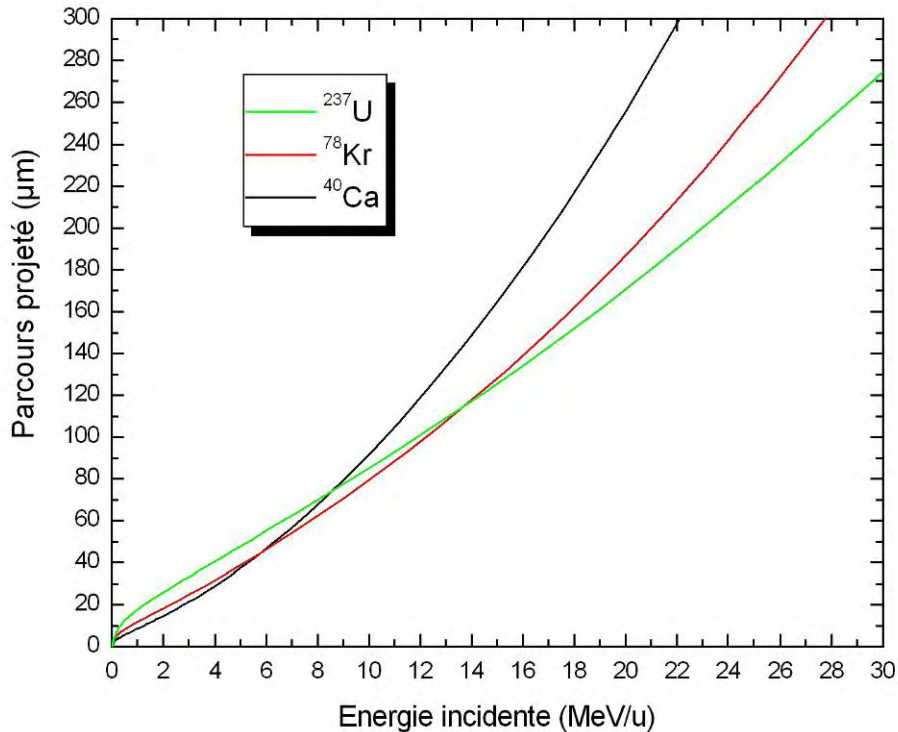


Figure II-1 : Evolution du parcours projeté de divers ions dans une cible de LiF en fonction de l'énergie du projectile. Les courbes ont été calculées avec le code SRIM [Ziegler 1985].

II. Diffusion de Rutherford

En mécanique classique, les trajectoires de deux particules après une collision sont bien déterminées par leurs vitesses, leurs masses et leurs paramètres d'impact (figure II-2).

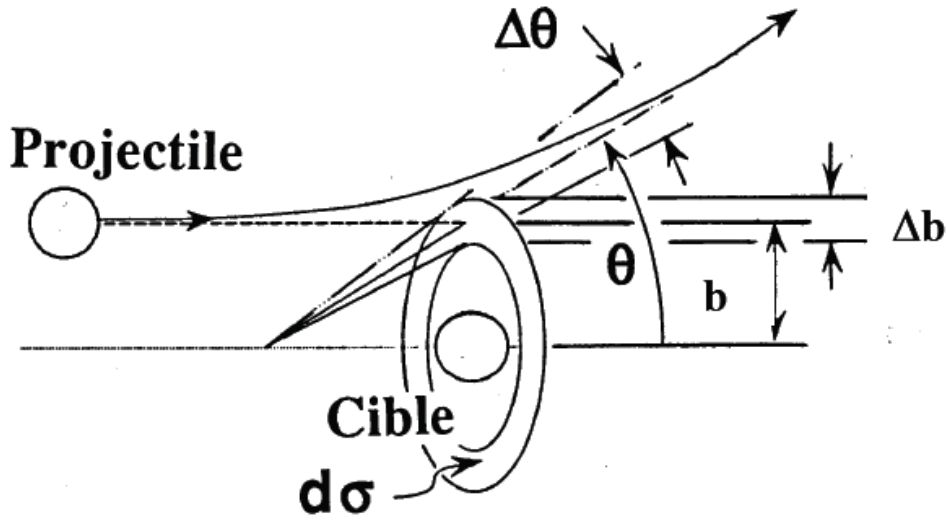


Figure II-2 : Caractérisation classique de l'interaction entre deux corps en fonction du paramètre d'impact b , de l'angle de diffusion θ et de la section efficace différentielle de collision $d\sigma$.

Pour une collision coulombienne, l'angle de diffusion θ dans le référentiel du centre de masse est relié au paramètre d'impact b et au diamètre de collision p par la relation :

$$\tan\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{p}{2b}$$

p : représente la distance minimum d'approche entre la particule incidente et la particule cible, lors d'un choc frontal ($b = 0$), défini par :

$$\frac{Z_1 Z_2 e^2}{p} = \frac{M_0 V_1^2}{2} \quad (\text{II-2})$$

Z_1 et Z_2 sont respectivement la charge du projectile et de la cible

M_0 : la masse réduite définie par : $(M_1 M_2) / (M_1 + M_2)$

M_1 : la masse du projectile d'énergie E et de vitesse V_1

M_2 : la masse de la particule cible, supposée au repos.

L'énergie cinétique communiquée à la cible est :

$$T = \frac{T_{\max}}{1 + \left(\frac{2b}{p}\right)^2} = T_{\max} \left(\sin\left(\frac{\theta}{2}\right)\right)^2 \quad \text{avec} \quad T_{\max} = \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} E \quad (\text{II-3})$$

T_{\max} représente l'énergie maximale transférée dans le cas d'un choc frontal ("binary encounter").

III. Calcul de la perte d'énergie due aux chocs coulombiens

La section efficace d'un tel transfert a été calculée par E. Rutherford [Rutherford 1911] :

$$d\sigma(E, T) = 2\pi b db = \pi \left(\frac{p}{2}\right)^2 T_{\max} \frac{dT}{T^2} \quad (\text{II-4})$$

La perte d'énergie est donnée par l'expression :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right) = N \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T d\sigma(E, T)$$

N est la densité atomique.

En remplaçant $d\sigma(E, T)$ par l'expression (II-4) ainsi que T_{\max} par (II-3) et p par (II-2), nous obtenons :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right) = N(Z_1Z_2e^2)^2 \frac{2\pi}{M_2V_1^2} \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} \frac{dT}{T} \quad (\text{II-5})$$

$$\text{Soit} \quad -\left(\frac{dE}{dx}\right) = N(Z_1Z_2e^2)^2 \frac{2\pi}{M_2V_1^2} \ln \frac{T_{\max}}{T_{\min}}$$

T_{\min} correspond à une énergie de liaison minimale (électrons de valence, ou excitation intra-bande). Elle est introduite afin d'éviter la divergence de l'intégrale.

IV. Pouvoir d'arrêt nucléaire ou collisions élastiques

Les interactions entre l'ion incident et les atomes de la cible sont traitées, en général, comme des chocs élastiques de deux particules, régis par les lois de la mécanique classique. Le transfert d'énergie conduit à des déplacements d'atomes, et à grande énergie l'interaction est purement coulombienne.

La grandeur qui décrit les interactions ion-atome est la section efficace (du processus de collision) (σ), définie comme la probabilité pour que le projectile cède de l'énergie à une particule-cible lors de son interaction. L'ion incident (d'énergie cinétique initiale E_I , de numéro atomique Z_I et de masse M_I) déplace un atome de la cible (de numéro atomique Z_2 et de masse M_2) de son site, en lui communiquant une certaine quantité d'énergie T . Ainsi la section efficace (donnée par la relation (II-4)) de collision s'écrit [Lehmann 1997] :

$$\sigma(E_I, T_1) = \frac{\pi(Z_I Z_2 e^2)^2 M_1}{T^2 E_I M_2} \quad \text{où } e^2 = 1.44 \times 10^{-7} \text{ eV/cm}$$

L'énergie perdue par collisions nucléaires par l'ion le long de son parcours s'écrit alors :

$$\left. \frac{dE}{dx} \right|_n = N \int_{T_{\min}}^{T_{\max}} T \sigma(E_I, T) dT$$

L'expression du pouvoir d'arrêt nucléaire devient (valable à grande vitesse) :

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_n = 2\pi N \frac{M_1}{M_2} \frac{Z_I^2 Z_2^2}{E_I} e^4 \ln \frac{T_{\max}}{T_{\min}} \quad (\text{II-6})$$

T_{\max} est donnée par l'expression (II-3).

V. Pouvoir d'arrêt électronique ou collisions inélastiques

La description des interactions inélastiques est beaucoup plus complexe, car ces interactions ne peuvent plus être décrites comme des interactions individuelles entre deux corps, l'ion projectile interagissant avec plusieurs électrons de la cible à la fois, eux-mêmes liés aux noyaux. Dans le cas des ions que nous allons utiliser, les ions interagissant dans une première étape avec les électrons auxquels ils vont transférer une partie de leur énergie. Les électrons

secondaires (électrons delta), suite à l'ionisation de la cible après passage de l'ion, peuvent être suffisamment énergétiques pour générer une cascade électronique.

Trois domaines de vitesses sont à distinguer pour évaluer la perte d'énergie électronique : ils sont définis par rapport à la quantité $Z_I^{2/3} v_0$ où v_0 est la vitesse orbitale de l'électron 1s de l'atome d'hydrogène, c'est-à-dire la vitesse de Bohr : $v_0 = 2.2 \times 10^6$ m/s. $Z_I^{2/3} v_0$ est typiquement la vitesse moyenne des électrons liés au projectile dans le modèle de Thomas-Fermi. En considérant v_I comme la vitesse du projectile, on définit :

- (a) Le régime des grandes vitesses lorsque $v_I \gg Z_I^{2/3} v_0$
- (b) Le régime des vitesses intermédiaires lorsque $v_I \approx Z_I^{2/3} v_0$ (pic de Bragg)
- (c) Le régime des basses vitesses lorsque $v_I \ll Z_I^{2/3} v_0$

V.1 Régime des grandes vitesses $v_I \gg Z_I^{2/3} v_0$ ($\ll c$, non relativiste)

Dans ce cas, l'ion incident est complètement épluché de ses électrons et il peut être considéré comme un ion de charge ponctuelle $Z_I e$. L'expression utilisée dans ce cas est la formule de Bethe [Bethe 1933] (voir équation II-5) :

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = \frac{4\pi e^4 (Z_I)^2 Z_2 N}{m_e v_1^2} \ln\left(\frac{T_{\max}}{T_{\min}}\right)$$

N est la densité atomique de la cible, Z_2 est le numéro atomique de la cible, m_e est la masse de l'électron, T_{\min} est l'énergie moyenne d'ionisation (I) des atomes de la cible et

$$T_{\max} = \frac{4m_e M_1 E}{(M_1 + m_e)^2} \cong 2m_e v_1^2. \text{ La prise en compte de l'excitation engendre l'ajout d'un facteur 2}$$

dans cette formule. On obtient donc pour le pouvoir d'arrêt électronique :

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = \frac{4\pi e^4 (Z_{\text{eff}})^2 Z_2 N}{m_e v_1^2} \ln\left(\frac{2m_e v_1^2}{I}\right) \quad (\text{II-7})$$

Z_{eff} est la charge effective du projectile. Dans ce domaine, la perte d'énergie est proportionnelle à $\frac{Z_{\text{eff}}^2 \ln(E_1)}{E_1} \approx \frac{Z_{\text{eff}}^2}{v_1^2} \ln(v_1^2)$; E_1 est l'énergie initiale du projectile, $\frac{Z_{\text{eff}}^2}{v_1^2}$ le paramètre de Sommerfeld, appelé aussi paramètre de perturbation. Cela signifie que la perte

d'énergie diminue lorsque l'énergie de la particule augmente. Cette formule est valable pour les ions de très grande vitesse non relativiste.

V.2 Régime des vitesses intermédiaires $v_1 \approx Z_1^{2/3} v_0$

Quand la vitesse du projectile diminue, le processus de capture entre en concurrence avec celui d'ionisation. Dans ce domaine, l'ion projectile n'est alors plus totalement épluché : il capture des électrons de la cible et son état de charge diminue. Sa charge électrique moyenne devient inférieure à $Z_1 e$, et le pouvoir d'arrêt électronique devient ainsi plus faible que ne le prévoit la formule de Bethe. La domaine de validité de cette dernière peut alors être étendu en introduisant une charge effective Z_1^* . Ainsi, aux vitesses intermédiaires, dû aux effets antagonistes entre la variation de la vitesse et de la charge effective (capture et perte des électrons), le dépôt d'énergie passe par un maximum, appelé **pic de Bragg**. Il dépend de Z_1 comme $Z_1^{2/3}$, il est à 0.15 MeV/u pour les protons et à 5 MeV/u pour l'uranium.

V.3 Régime des basses vitesses $v_1 \ll Z_1^{2/3} v_0$

A faible vitesse, l'ion possède la plus grande partie de ses électrons. Au cours de la collision entre l'ion et un atome cible, les nuages électroniques des deux partenaires se recouvrent. Un réarrangement des niveaux électroniques a lieu au cours de l'interaction, engendrant la formation d'une quasi-molécule possédant ses propres états électroniques qui évoluent en fonction de la distance interatomique ("molecular orbitals"). Seuls les électrons faiblement liés de la cible contribuent à la perte d'énergie de l'ion. Lindhard, Scharff et Schiøtt [Lindhard 1961] (théorie LSS) et indépendamment Firsov [Firsov 1959] ont montré que le pouvoir d'arrêt électronique est proportionnel à la vitesse de l'ion dans ce domaine de vitesse.

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = N \times 5.15 \times (Z_1 + Z_2) \times 10^{-15} \times \frac{v_1}{v_0} \quad (\text{Firsov, exprimé en eV.cm}^{-1})$$

$$-\left. \frac{dE}{dx} \right|_e = \xi_\epsilon \times 8\pi e^2 a_0 \times \frac{Z_1 Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \times \frac{v_1}{v_0} \quad (\text{Lindhard}) \quad (\text{II-8})$$

Où $a_0 = 0.529 \cdot 10^{-8}$ cm. ξ_ϵ varie entre 1 et 2 et il est approximé par $\xi_\epsilon = NZ_1^{1/6}$.

La figure II-3 montre l'évolution du pouvoir d'arrêt électronique dans le LiF en fonction de l'énergie de la particule incidente de différents ions.

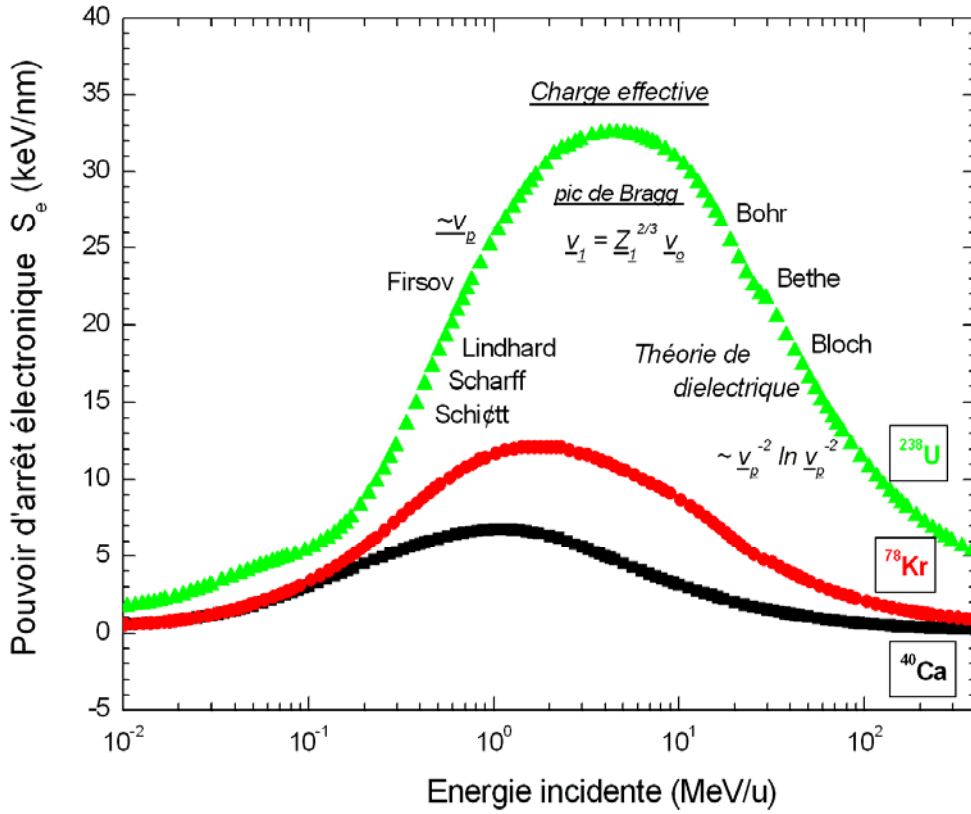


Figure II-3 : Evolution de la perte d'énergie électronique en fonction de l'énergie des différents ions incidents dans le LiF, calculée avec le code SRIM [Ziegler 1985].

VI. Comparaison entre la perte d'énergie électronique et nucléaire

Dans le domaine des vitesses $v_I \gg v_0$, si nous négligeons la variation logarithmique des relations (II-6) et (II-7), le rapport entre la perte d'énergie nucléaire et la perte d'énergie

électronique peut s'écrire :

$$\frac{-\left(\frac{dE}{dx}\right)_n}{-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e} = \frac{Z_2 m_e}{M_2}, \text{ voisin de } m_e/2m_p \approx \frac{1}{3500}$$

La perte d'énergie par collision Rutherford avec les noyaux de la cible est donc négligeable devant la perte d'énergie électronique, pour des énergies incidentes supérieures à 0.1 MeV/u (figure II-4). Compte tenu que notre étude concerne les ions lourds de grande énergie, supérieurs à quelques MeV/u, le transfert d'énergie se fait majoritairement par collisions inélastiques.

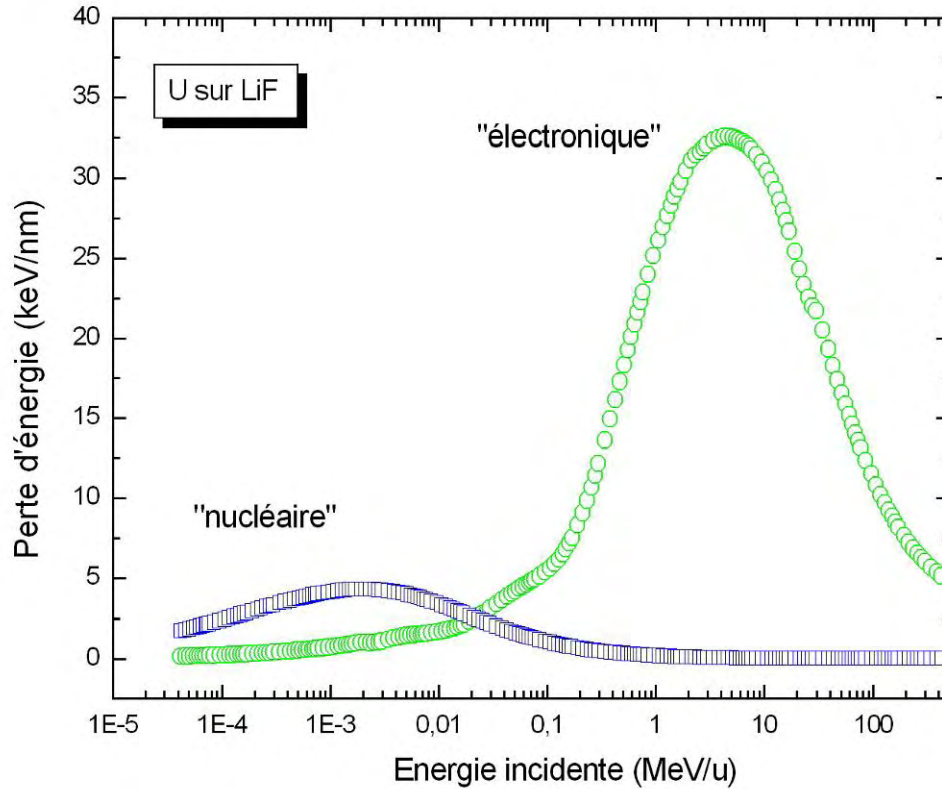


Figure II-4 : Comparaison entre la perte d'énergie nucléaire et électronique dans le cas des ions d'uranium sur LiF, calculée avec le code SRIM [Ziegler 1985].

B – Pulvérisation par impact d'ion ; état des connaissances

L'irradiation d'une cible solide par des ions multichargés peut conduire à l'émission d'atomes, d'agrégats et des neutres, à travers ou depuis la surface. Cette matière pulvérisée depuis le solide peut résulter d'un transfert de quantité de mouvement des ions projectiles aux atomes de la cible, ou de processus indirects impliquant les électrons du solide.

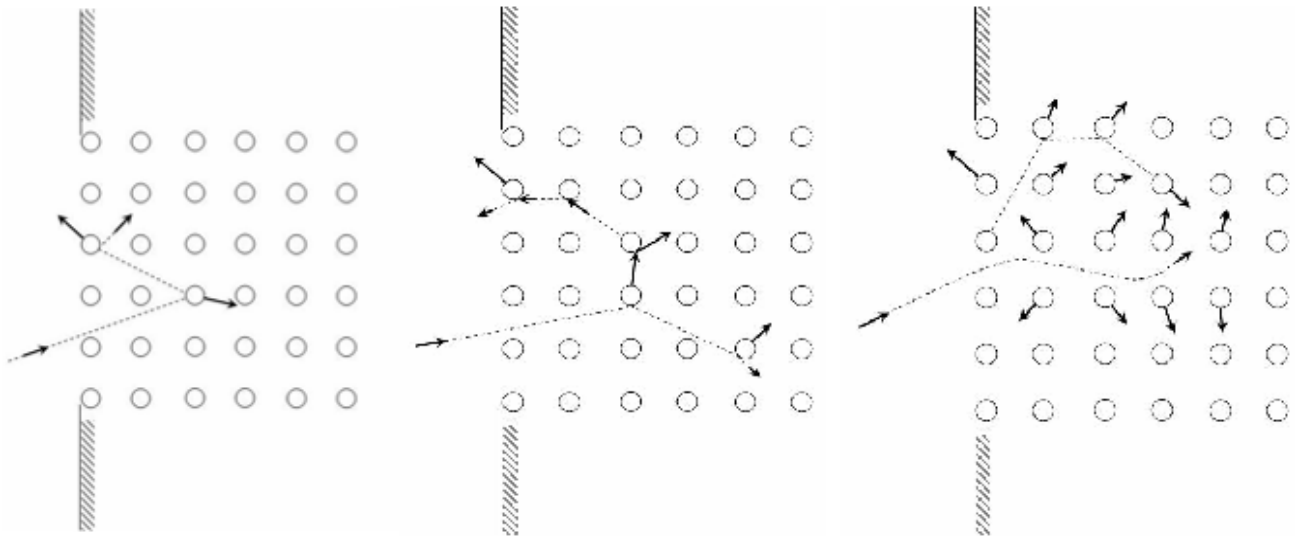
En fonction de l'énergie des ions incidents, on distingue la pulvérisation induite par le pouvoir d'arrêt nucléaire dans le domaine des collisions élastiques (pulvérisation nucléaire), et par le pouvoir d'arrêt électronique (pulvérisation électronique) dans le domaine des collisions inélastiques.

Dans ce chapitre nous présentons les modèles et résultats expérimentaux se rapportant à la pulvérisation induite dans les deux régimes de ralentissement nucléaire et électronique par des

ions multichargés. Dans les deux cas, nous présentons les aspects théoriques et les principaux résultats de la littérature en rapport avec le travail de cette thèse.

I. **Pulvérisation induite par ralentissement nucléaire**

Lors de l'excitation d'un solide par le passage d'un ion projectile, certains atomes mis en mouvement à proximité de la surface peuvent être éjectés du matériau : ce phénomène est appelé pulvérisation ("sputtering" en anglais). En fonction du nombre d'atomes de recul créés par le passage de l'ion, on distingue trois régimes de pulvérisation nucléaire : régimes de simples collisions, de cascades linéaires et de cascades non linéaires ou "de pointe" (figure II-5).



a) Le régime de simple collision b) Le régime de cascade linéaire c) Le régime de pointe

Figure II-5 : Les trois régimes de pulvérisation nucléaire [Sigmund 1981].

I.1 **Régime de collision simple**

Dans le régime de collision simple, la pulvérisation est caractérisée par le faible nombre d'atomes mis en mouvement lors du ralentissement de l'ion projectile. Cette situation correspond à la pulvérisation induite par des ions de faible énergie cinétique ou par des ions légers (H, He de quelques keV). Dans ce régime, la pulvérisation est alors induite par de très courtes séquences de collisions pouvant mener à l'éjection (figure II-5a). Bien que les rendements de pulvérisation soient faibles ($Y < 0.1$), il existe de nombreuses données concernant la pulvérisation dans ce régime.

La pulvérisation dans le régime de collision simple a été intensivement étudiée expérimentalement, et des simulations numériques, en particulier le code TRIM, ont été développées [Ziegler 1985]. Les résultats obtenus ont pu être validés par comparaison aux données expérimentales [Takeuchi 1983, Biersack 1984, Biersack 1987].

En ce qui concerne le régime de pulvérisation par cascade linéaire et le régime de pointe, les atomes de reculs primaires sont assez énergétiques pour générer des reculs secondaires, voire d'ordre plus élevé. Certains peuvent s'approcher de la surface de la cible et franchir la barrière de surface.

I.2 Régime de cascade linéaire

Dans le régime de cascade linéaire, les collisions entre le projectile et les atomes de la cible produisent des atomes de recul énergétiques qui peuvent à leur tour produire une autre génération d'atomes de recul. Cependant, la densité d'atomes impliqués dans une cascade est suffisamment faible pour que les collisions entre les atomes mis en mouvement soient très rares (figure II-5b). Dans ces conditions, les séquences de collisions peuvent être décrites dans le cadre de la théorie du transport linéaire. Ce régime de collision est rencontré pour des projectiles dont l'énergie cinétique est de l'ordre du keV jusqu'à quelques centaines de keV, excepté pour les ions très lourds qui induisent une trop forte densité d'atomes en mouvement dans la cascade [Sigmund 1981].

L'étude théorique de la pulvérisation dans ce régime de cascade de collision linéaire a été menée en détail par P. Sigmund [Sigmund 1969]. Le processus complet de pulvérisation peut être divisé en trois étapes, la première étant le ralentissement et la dissipation de l'énergie de l'ion, la seconde le développement de la cascade de collision et la troisième le passage d'un atome de la cascade de collision à travers la surface (atome ou ion pulvérisé).

La théorie de cascade linéaire prédit une distribution angulaire du flux, Φ , d'atomes pulvérisés du type :

$$\frac{d\Phi}{d\Omega} \propto \cos^n \theta \text{ avec } 1 \leq n \leq 2$$

θ représente l'angle polaire entre les particules émises et la normale à la surface. Le coefficient n , inférieur à 1 dans le cas d'ions de basse énergie (inférieur au keV, c'est-à-dire dans le régime de collision simple), augmente avec l'énergie des ions pour atteindre une valeur comprise entre 1 et 2.

Pour $n = 1$ (qui est proche de ce qui est généralement observé, voir § B-II.1 et chapitre 6), le rendement différentiel de pulvérisation, contenant les distributions en angle et en énergie, donne la distribution de Sigmund-Thompson pour le flux Φ d'atomes pulvérisés :

$$\frac{d^3\Phi}{dEd^2\Omega} \propto \frac{E}{(E + U_s)^{3-2m}} \times \cos\theta \quad (\text{II-9})$$

U_s représente l'énergie de liaison de surface. Le paramètre m est relatif aux potentiels d'interaction employés¹ dans l'estimation des sections efficaces de collisions², il dépend donc du domaine d'énergie considéré. Ainsi, $m = 1$ décrit des diffusions de type Rutherford et $m = 0$ des collisions à basse énergie (quelques keV). Pour les hautes énergies des particules de recul, la distribution en énergie $N(E)$ est proportionnelle à $1/E^2$ [Betz 1994]. La forme de la distribution en énergie du flux d'atomes pulvérisés (équation II-9) est indépendante de l'énergie, de l'incidence de l'ion projectile ainsi que la direction d'émission des atomes pulvérisés et présente un maximum : $E_{\max} = \frac{U_s}{2(1-m)}$. De plus, le rendement de pulvérisation déduit à partir de l'expression du flux, est proportionnel au pouvoir d'arrêt nucléaire : $Y \sim S_n$.

La théorie de cascade de collision linéaire a été développée pour des cibles amorphes par résolution des équations de transport de Boltzmann, en utilisant les sections efficaces appropriées pour les collisions élastiques ("nucléaires"). Les données expérimentales sur les rendements totaux, les distributions en énergie et en angle pour des cibles polycristallines sont assez bien reproduites par cette théorie, bien qu'elle ne soit strictement valable que pour des cibles amorphes. Le bon accord avec l'expérience indique que le réseau cristallin ne joue pas un rôle important pour la plupart des quantités étudiées.

¹ La potentiel d'interaction $V(r)$ est donnée par : $V(r) \sim r^{-1/m}$

² L'équation de Boltzmann proposée par Sigmund intègre deux types de collisions : collisions ion-atome et atome-atome.

Deux sections efficaces de collision élastique sont alors considérées :

$d\sigma = CE^{-m}T^{-1-m}dT$ et $d\sigma_1 = C_1E^{-m}T^{-1-m}dT$

où C dépend de la cible seule et C_1 du couple projectile-cible.

I.3 Régime de cascade non linéaire ; régime de pointe

Lorsque l'ion incident transmet de fortes densités d'énergie aux atomes du réseau, presque toutes les particules à l'intérieur d'un petit volume de la cascade de collision, appelé "pointe" ("spike" en anglais), sont en mouvement. Dans le régime de pointe, la densité d'atomes en mouvement est suffisamment grande pour que tous les atomes dans le « volume de pointe » soient en mouvement (figure II-5c), conduisant à des collisions entre eux, ce qui induit des effets non-linéaires.

Si les atomes en mouvement dans la pointe peuvent atteindre l'équilibre thermodynamique local, alors la distribution de leurs énergies cinétiques doit correspondre à une distribution de Maxwell-Boltzmann et le flux d'atomes traversant la surface est caractérisé par l'équation II-10 où T_p correspond à la température de pointe, et représente l'énergie moyenne des atomes dans le volume de la pointe [Thompson 1987].

$$\frac{d^3\Phi}{dEd^2\Omega} \propto Ee^{-E/kT_p} \times \cos\theta \quad (\text{II-10})$$

La principale faiblesse de ce modèle est l'hypothèse très forte d'un équilibre thermodynamique local. En effet, le concept de température est de nature statistique et ne peut par conséquent rigoureusement s'appliquer qu'à un système comportant un grand nombre d'éléments. Ce point est aujourd'hui encore le sujet de nombreuses controverses.

En introduisant une force de liaison en surface dont les atomes doivent s'affranchir pour être pulvérisés, une relation alternative à l'équation II-10 peut s'écrire comme l'équation II-11.

$$\frac{d^3\Phi}{dEd^2\Omega} \propto Ee^{-\frac{(E+U_s)}{kT_p}} \times \cos\theta \quad (\text{II-11})$$

Sigmund et collaborateurs [Sigmund 1981, Sigmund 1984] ont proposé une relation dans l'hypothèse d'un volume de pointe cylindrique semi-infini donnée par l'équation II-12, où T_A correspond à la température ambiante (macroscopique) du solide :

$$\frac{d^3\Phi}{dEd^2\Omega} \propto Ee^{-\frac{(E+U_s)}{k(T_p+T_A)}} \times \cos\theta \quad (\text{II-12})$$

Nous allons maintenant nous intéresser aux principaux résultats expérimentaux obtenus dans le domaine de la pulvérisation nucléaire.

I.4 Résultats expérimentaux

Les résultats expérimentaux sur les distributions en énergie et en angle dans le domaine de la pulvérisation nucléaire sont en grande majorité obtenus pour des cibles métalliques [Hansen 1998, Wahl 1994, Husinsky 1993].

Les effets de la charge de l'ion incident ainsi que de l'énergie cinétique, ont été étudiés sur différents matériaux isolants par T. Neidhart et collaborateurs. Le fluorure de lithium (LiF) a fait l'objet d'une attention particulière. Il a été montré [Neidhart 1995] que la perte de masse d'une couche mince polycristalline de LiF (300 nm), lors de l'irradiation par des ions Ar de charge 1+ à 9+, augmente linéairement avec l'énergie potentielle de l'ion incident (figure II-6) et ceci quelle que soit l'énergie cinétique du projectile comprise entre 10 eV et 1000 eV.

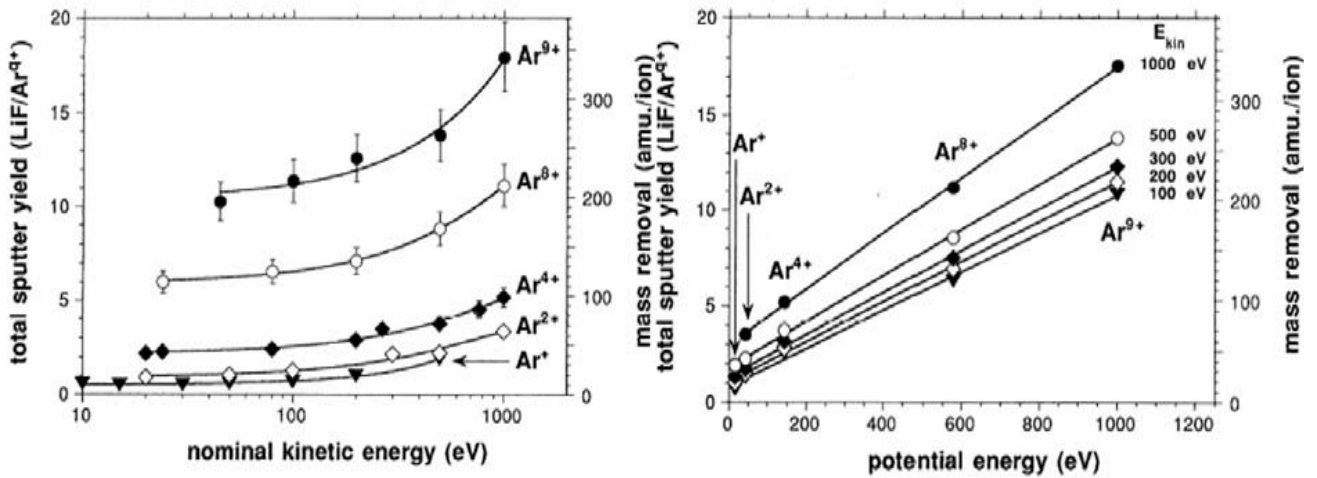


Figure II-6 : Rendements de pulvérisation du LiF irradié par des ions Ar^{q+} ($1 < q < 9$) d'énergie cinétique comprise entre 10 eV et 1000 eV [Neidhart 1995].

En règle générale, la forme de la distribution angulaire peut être approximée par une loi de type $(\cos\theta)^n$. Le coefficient n , inférieur à 1 dans le cas d'ions de basse énergie (inférieur au keV), c'est-à-dire dans le régime de collision simple), augmente avec l'énergie des ions pour atteindre une valeur comprise entre 1 et 2 [Matsuda 1986, Andersen 1985]. Cette tendance est confirmée par les simulations de J.P. Biersack et W. Eckstein [Biersack 1984].

D'après la théorie de cascade linéaire, les distributions angulaires pour des cibles polycristallines varient comme $(\cos\theta)^n$, avec n proche de 1, et les distributions en énergie varient comme $E/(E+U_s)$. Cela reste également valable pour le régime de pointe, lorsque les ions projectiles arrivent perpendiculairement à la surface de la cible [Sigmund 1981].

En résumé deux éléments sont à retenir concernant la pulvérisation nucléaire :

- 1- Dans tous les régimes considérés : régime de collision simple, régime de cascade linéaire ou régime de pointe, tous les modèles prédisent une variation des distributions angulaires des particules pulvérisées en $(\cos\theta)^n$, avec $1 \leq n \leq 2$. Pour les distributions en énergie, les deux modèles collision simple et cascade linéaire prédisent une variation des particules pulvérisées en $E/(E+U_s)^{3-2m}$. Expérimentalement, les particules pulvérisées présentent des distributions en énergie et en angle en accord avec ces prédictions.
- 2- Dans le régime de cascade linéaire, le rendement de pulvérisation, Y , varie linéairement en fonction du pouvoir d'arrêt nucléaire.

II. Pulvérisation induite par ralentissement électronique

Quand un ion rapide d'énergie de l'ordre de quelques MeV/u pénètre dans une cible solide, le processus de ralentissement est dominé par l'interaction avec les électrons de la cible. Les ions lourds rapides induisent une forte excitation électronique locale autour de leur trajectoire. Cette forte perturbation locale du système électronique peut conduire à la mise en mouvement des atomes de la cible. Le mouvement des atomes de la cible peut former des défauts dans le volume autour de la trajectoire [Huber 1998].

Cette forte perturbation locale du système électronique peut aussi engendrer l'émission d'atomes de la cible. Dans ce cas là, on parle de "pulvérisation électronique".

Contrairement à la pulvérisation nucléaire, la pulvérisation électronique est un phénomène indirect qui implique des mécanismes de couplage permettant de convertir l'excitation électronique en mouvement des atomes. Ainsi, dans ce régime, les propriétés spécifiques du matériau jouent un rôle prépondérant. Dans les cristaux ioniques ou les cristaux de gaz rares solides dans lesquels les mécanismes excitoniques sont efficaces pour créer des

défauts, la pulvérisation électronique est observée à faible pouvoir d'arrêt [Brown 1993, Itoh 1987].

Plusieurs modèles ont été conçus pour décrire la formation des défauts et la pulvérisation électronique lors de la pénétration d'un ion rapide dans un solide. Jusqu'à présent la question reste ouverte : quel modèle est capable de décrire ces phénomènes pour tous les types des matériaux ?

Dans cette partie, nous présentons les modèles théoriques principaux concernant la pulvérisation électronique.

II.1 Modèles de la pointe thermique

Dans ce modèle, les électrons et les atomes sont décrits comme deux systèmes couplés [Mieskes 2003]. L'énergie cinétique de l'ion incident est transférée aux électrons du milieu qui vont se thermaliser en $\approx 10^{-15}$ sec après le passage de l'ion. Ces électrons chauds vont transférer leur énergie par couplage (= diffusion) électron-phonon aux atomes froids du milieu. L'équilibre thermique entre les atomes froids et les électrons chauds est atteint après $\approx 10^{-13}$ sec, qui est typiquement la période de vibration des atomes du réseau cristallin. La diffusion de l'énergie thermique, de ces électrons au réseau atomique, est décrite par des équations classiques où la perte d'énergie électronique est la source de chaleur. Le terme d'échange de chaleur est donné par le produit $g \times (T_e - T_a)$ avec g la constante de couplage et $(T_e - T_a)$ la différence de température entre les électrons et les atomes. Les deux équations différentielles de la chaleur sont exprimées dans une géométrie cylindrique car les trajectoires des ions rapides sont rectilignes :

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right] - g(T_e - T_a) + A(r, t)$$

$$C_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r} \right] - g(T_e - T_a)$$

T , C et K sont respectivement les températures, les chaleurs spécifiques, et les conductivités thermiques pour les électrons (index e) et les atomes (index a).

La fonction $A(r,t)$ définit la déposition spatio-temporelle de l'énergie par le projectile sur les électrons du milieu. Elle est formée d'une distribution Gaussienne en temps et d'une distribution radiale en $1/r^2$ pour les électrons δ selon le modèle de Katz [Waligorski 1986].

$$A(r,t) = bS_e e^{-(t-t_0)^2 / 2S^2} F(r)$$

S_e est le taux de perte d'énergie électronique. L'écart-type S pour la distribution Gaussienne correspond au temps nécessaire pour que les électrons atteignent leur équilibre thermique. La majorité des électrons déposent leur énergie très près de la trajectoire du projectile en un temps $t_0 \approx 10^{-15}$ sec. Le facteur de normalisation b assure que l'intégration de $A(r,t)$ dans l'espace et dans le temps donne le taux de perte d'énergie électronique totale S_e .

La résolution numérique de ces deux équations différentielles [Toulemonde 2000] donne la température des atomes $T_a(t,r)$ autour de la trajectoire du projectile en fonction du temps (t) et de l'espace (r).

Le modèle d'évaporation thermique peut aussi décrire les processus de surface comme la pulvérisation électronique. Il est également possible de calculer le nombre des particules évaporées quand un projectile rapide traverse la surface d'une cible donnée [Mieskes 2003]. L'évaporation est déterminée par la température locale. Puisque la température autour de la trajectoire des ions diminue en fonction de la distance radiale, le rendement total de pulvérisation doit être déterminé à partir de l'intégrale en temps et en espace du taux d'évaporation local $\Phi(T(r,t))$:

$$Y = \int_0^\infty dt \int_0^\infty \phi(T(r,t)) 2\pi r dr ; \phi(T(r,t)) = \frac{n_M k_B T}{\sqrt{2\pi M k_B T}} \times e^{-\frac{U}{k_B T}}$$

n_M correspond au nombre de molécules, M à la masse moléculaire, k_B à la constante de Boltzmann et U à l'énergie de liaison des atomes de surface.

En fonction de la température atteinte au voisinage de la trace, deux modèles sont proposés : pulvérisation par évaporation thermique [Johnson 1993, Urbassek 1984] et pulvérisation par flux gazeux. L'évaporation thermique correspond au modèle présenté au paragraphe B-I.3.

Pour le flux gazeux, de nombreuses approches ont été utilisées pour modéliser les processus de pulvérisation. J. Sunner et collaborateurs [Sunner 1988] ont utilisé un modèle thermodynamique simple. Urbassek & Waldeer [Urbassek 1991] ont eu recours à des simulations de dynamique moléculaire. Urbassek & Waldeer [Urbassek 1991] se sont intéressés, dans le cadre des simulations de dynamique moléculaire, à l'émission d'agrégats (voir chapitre 5 §V.1). Ils prédisent une loi en puissance de la forme $n^{-\alpha}$, avec $\alpha = 7/3$ ($Y(n) \sim n^{-7/3}$).

Dans le modèle d'évaporation thermique, les atomes sont émis un à un suite à une évaporation dans le cœur de la trace. Alors que, dans le modèle de flux gazeux, la zone de la cible où l'énergie est déposée se vaporise instantanément et toutes les particules sont émises en une seule fois. La figure II-7 présent un schéma des mécanismes de pulvérisation par pointe thermique.

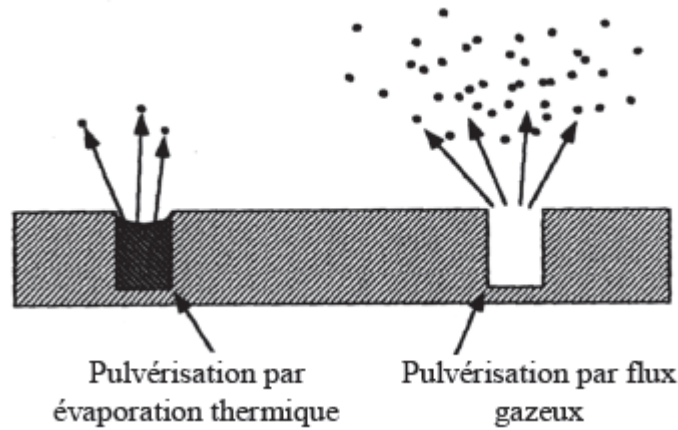


Figure II-7 : Schéma des mécanismes de pulvérisation par pointe thermique [Reimann 1993].

Dans les deux modèles (l'évaporation thermique et le flux gazeux), la distribution angulaire de pulvérisation doit être proche de celle d'un flux isotrope³ ($\frac{dY}{d\Omega} \propto \cos \theta$). Pour ces deux modèles également, il existe un seuil en pouvoir d'arrêt en dessous duquel la pulvérisation n'a pas lieu, induit par l'énergie de liaison de surface dans le modèle d'évaporation et par la température de condensation dans le modèle de flux gazeux.

Nous allons maintenant nous intéresser aux différentes « prédictions » de la pulvérisation de la pointe thermique. En général, ces prédictions présentent une dépendance quadratique du rendement de pulvérisation en fonction du dépôt d'énergie lorsque ce dernier est élevé. Pour certains matériaux, tels que LiF et H₂O, on observe des dépendances plus fortes jusqu'à $Y \sim S_e^4$

³ L'émission est isotrope lorsque la puissance de la fonction cosinus est égale à 1.

[Assmann 2007]). R. Evatt [Evatt 1980], R.E. Johnson [Johnson 1987] ont discuté de l'évolution du rendement, Y , en fonction du pouvoir d'arrêt électronique. Le rendement de pulvérisation doit évoluer comme $(S_e)^n$, avec $1 \leq n \leq 2$ pour le modèle d'évaporation [Johnson 1987, Evatt 1980] : $n = 1$ pour les faibles pouvoirs d'arrêt électronique, et $n = 2$ pour les forts pouvoirs d'arrêts. Le modèle de flux gazeux prédit $n = 3$ [Urbassek 1987].

II.2 Modèle de l'explosion coulombienne

Ce modèle suppose que le déplacement des atomes, après leur ionisation par l'ion incident, est dû à leur répulsion mutuelle. Ce déplacement peut produire des zones de défauts ou des traces [Lesueur 1993, Fleischer 1967], et aussi de la pulvérisation des atomes en surface [Schenkel 1998, Johnson 1982]. Ce modèle suppose que le temps de neutralisation de la charge positive induite dans le milieu soit suffisamment grand ($>10^{-14}$ sec). Cette condition n'est remplie que pour les isolants puisque le temps de neutralisation de la charge induite peut atteindre quelques dizaines de picosecondes. Par contre, dans les conducteurs, la mobilité des électrons est très grande, et la neutralisation de la trace trajectoire de l'ion se fait en 10^{-15} sec.

Un calcul pour ce modèle sera développé dans le chapitre 6. Nous comparons la prédiction par ce modèle à la distribution en énergie $N(E)$ mesurée. Ce calcul est basé sur l'interaction coulombienne simple entre deux charges ponctuelles suite à une ionisation complète dans le cœur de trace.

II.3 Modèle de l'onde de choc et de l'impulsion de pression

D'après M.J. Guinan [Guinan 1974], l'énergie se dissipe plus probablement par un mécanisme hydrodynamique⁴ que par un mécanisme thermique. Contrairement aux modèles de pulvérisation par pointe thermique (évaporation ou flux gazeux), les modèles de pulvérisation par l'onde de choc se caractérisent soit par son caractère indirect soit par le mouvement collectif induit à distance.

Le modèle de désorption par onde de choc considère un volume sphérique dans lequel l'énergie est déposée par le projectile lors d'une collision proche de la surface. La pulvérisation peut alors être réalisée de différentes façons. Par exemple, lorsqu'une onde de choc venant de l'intérieur du matériau atteint la surface, une ablation mécanique peut conduire à l'émission de

⁴ Les modèles de pulvérisation par flux gazeux ou par l'onde de choc reposent sur une approche hydrodynamique

particules. Après son passage, une onde de choc peut également laisser la matière dans un état thermodynamique correspondant aux conditions d'évaporation ou d'expansion par flux gazeux décrits précédemment. Le calcul de l'énergie moyenne tient compte à la fois de l'énergie déposée sous forme de chaleur et de déformation plastique.

Dans l'interprétation de Y. Kitazoe et collaborateurs [Yamamura 1982, Kitazoe 1981] les ions d'une centaine de keV sont supposés déposer leur énergie à une profondeur R_c (figure II-8). Si ϵ_0 l'énergie cinétique déposée par atome à l'intérieur de la sphère de rayon R_c est supérieure à une certaine valeur critique ϵ_c , l'onde de choc générée par ce brusque dépôt d'énergie provoque à la surface du matériau cible l'éjection d'un cône de matière. Le rendement de pulvérisation, Y , est proportionnel à $(S_e)^{3/2}$ et dépend bien sûr de l'angle d'ouverture du cône d'éjection θ (figure II-8).

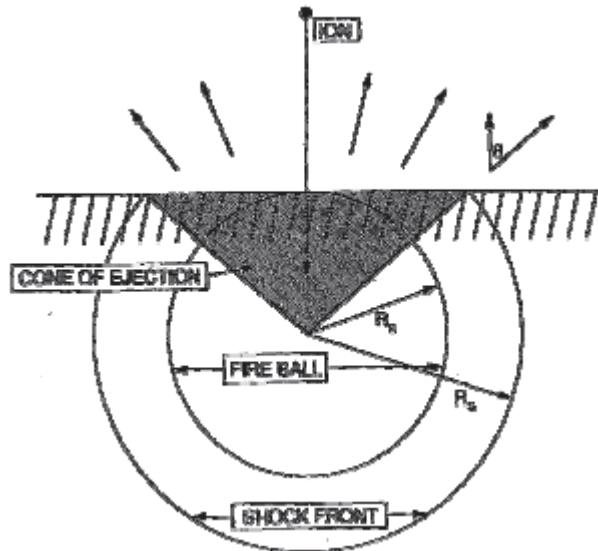


Figure II-8 : schéma d'une onde de choc sphérique induite par un excès d'énergie à l'intérieur d'une sphère de rayon R_c , appelée "fire ball", R_s représente le rayon maximum de matière pulvérisée [Reimann 1993].

Contrairement à Y. Kitazoe et collaborateurs [Yamamura 1982, Kitazoe 1981], qui utilisent un critère d'énergie dans leur approche de la pulvérisation par onde de choc, Bitensky & Parilis [Bitensky 1987] considèrent un critère de pression. La pression considérée est celle créée par le front avant de l'onde de choc. D'après Y. Hayashiuchi [Hayashiuchi 1977], la propagation de l'onde de choc dans la cible est de symétrie cylindrique pour des ions lourds ou des fragments

de fission incidents. Mais, dans une région proche de la surface, cette symétrie n'est plus respectée.

En incidence rasante ($\delta \leq 90$), Bitensky & Parilis [Bitensky 1987] obtiennent un rendement de pulvérisation, Y , proportionnel à $(S_e)^{3/2}$. Ces auteurs se sont aussi intéressés à l'émission d'agrégats (voir chapitre 5 §V.1). Ils prédisent une loi en puissance de la forme $n^{-\alpha}$, avec $\alpha = 2$ ($Y(n) \sim n^{-2}$).

Le modèle de désorption par impulsion de pression suppose une diffusion classique de l'énergie, depuis la zone initialement excitée du matériau vers le reste du matériau [Fenyö 1992, Johnson 1989]. L'évolution temporelle du gradient de densité d'énergie lors de la diffusion peut être assimilée à une impulsion de pression locale. Si la composante perpendiculaire de la pression en un point de la surface est supérieure à une certaine pression critique, dépendante de l'énergie de liaison de surface, alors des particules peuvent être pulvérisées. Ce modèle prédit une distribution angulaire de pulvérisation sous incidence normale fortement anisotrope et piquée à 45° autour de la normale à la surface, tandis qu'elle est piquée vers 90° lors de l'incidence oblique. Le rendement de pulvérisation doit évoluer en fonction du pouvoir d'arrêt comme $(S_e)^3$.

Les modèles de pulvérisation par onde de choc et par impulsion de pression sont tous les deux des modèles collectifs et mettent en évidence l'existence d'un seuil de pulvérisation lié à la barrière de surface U . Cependant, la différence entre les deux modèles réside dans les caractéristiques des processus d'excitation propres à chaque modèle, et non pas dans les mécanismes d'émission. Cette différence est perceptible dans les dépendances du rendement de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt obtenu pour chaque modèle.

II.4 Modèle de désorption par migration de défauts

Ce modèle considère la formation de défauts électroniques localisés, en réponse à l'excitation de la bande de valence du solide [Aumayr 1999, Sporn 1997] par l'ion multichargé. Dans certains matériaux isolants, tels que les halogénures d'alcalins et SiO_2 , cette excitation de la bande de valence conduit à une déformation du réseau agissant comme piège pour les trous ou excitons créés. Ces défauts constituent alors respectivement des trous auto piégés et des excitons auto piégés (figure II-9).

La figure II-9 montre l'application du modèle de pulvérisation par migration de défauts dans le cas de LiF. L'excitation de la bande de valence par l'ion multichargé peut conduire à la formation d'un exciton auto piégé, notamment par neutralisation Auger du projectile (figure II-9). A température ambiante, cet exciton auto piégé va rapidement se scinder en deux centres colorés, un centre H (ion moléculaire F_2 à la position d'un anion du réseau) et un centre F (un électron localisé sur un site anionique) (figure II-10). Les centres F et H créés au cœur du matériau peuvent ensuite diffuser vers la surface, où le centre H s'annihile pour former un atome neutre F^0 et le centre F peut neutraliser un cation Li^+ pour former un atome neutre Li^0 (figure II-10).

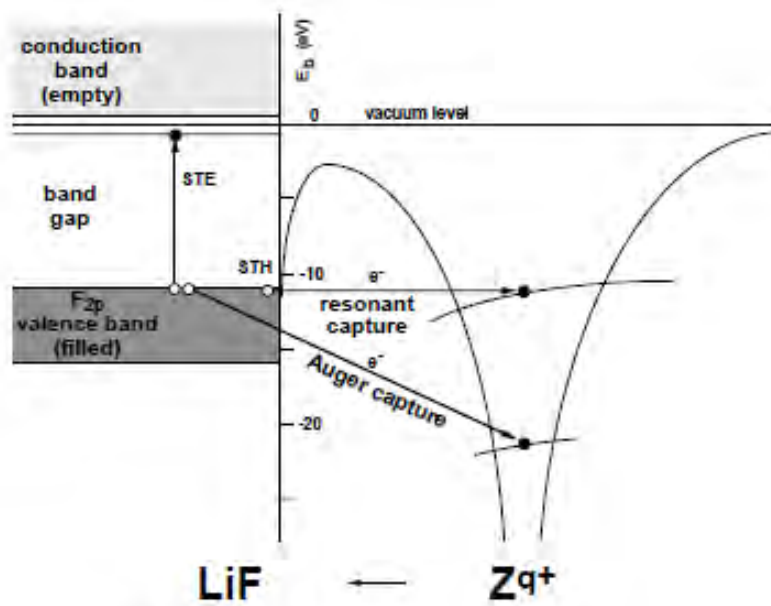


Figure II-9 : Les transitions électroniques entre la surface et de l'ion projectile conduisant à la formation de trous (par neutralisation de résonance) ainsi que des paires électron-trou (par neutralisation Auger) [Aumayr 1999].

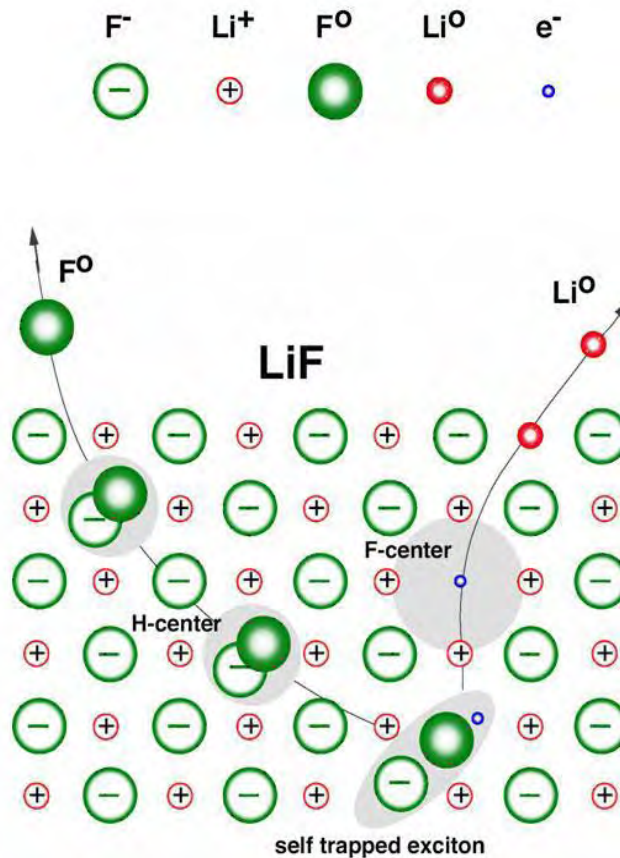


Figure II-10 : Représentation schématique de la pulvérisation par migration de défauts, dans le cas de LiF [Aumayr 1999].

Dans le prochain paragraphe, nous présenterons les principaux résultats expérimentaux obtenus en pulvérisation électronique et les comparaisons réalisées avec les différents modèles théoriques que nous venons de présenter. Afin de clarifier les connaissances théoriques, le tableau ci-dessous présente un récapitulatif des différents modèles de pulvérisation :

	Pulvérisation nucléaire		Pulvérisation électronique				
	Modèles de la cascade		Modèles de pulvérisation thermiques		Modèles de pulvérisation par choc		Modèle de l'explosion coulombienne
	<i>Cascade Linéaire</i>	<i>Cascade non linéaire ; régime de pointe</i>	<i>Evaporation thermique</i>	<i>Flux gazeux</i>	<i>Onde de choc</i>	<i>Impulsion de pression</i>	
$Y=f(S)$	$Y \propto S_n$ [Sigmund 1981]		Faibles S_e : $Y \propto S_e$ Forts S_e : $Y \propto S_e^2$ [Evatt 1980, Johnson 1987]	$Y \propto S_e^3$ [Johnson 1989]	$Y \propto S_e^{3/2}$ [Bitensky 1987]	$Y \propto S_e^3$ [Johnson 1989]	
$Y=f(n)$ Taille d'agrégats $(LiF)_nLi^+$				$Y \propto n^{-7/3}$ [Urbassek 1991]	$Y \propto n^{-2}$ [Bitensky 1987]		
$N(E)$	$\propto \frac{E}{(E+U_s)^{3-2m}}$ $m = 0 \text{ ou } 1$ [Sigmund 1981]	$\propto E \exp(-\beta E)$ [Thompson 1987]					$\propto 1/E^2 \exp(-1/E^2 + 1/E)$
$N(\theta)$	De la forme : $(\cos\theta)^n$ $1 \leq n \leq 2$ [Sigmund 1981]		De la forme : $(\cos\theta)^1$			Incidence normale : distribution piquée à 45° par rapport à la normal de la cible Incidence inclinée : distribution piquée plus vers 90° que vers 45° [Johnson 1989]	

II.5 Résultats expérimentaux de pulvérisation électronique

Dans ce paragraphe, nous présentons les principaux résultats expérimentaux obtenus sur la pulvérisation électronique. Nous allons nous concentrer plus particulièrement sur les points suivants : l'évolution des rendements de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S_e , les distributions en énergie et en angle des particules pulvérisées. Dans la plupart des matériaux irradiés (semi-conducteur, isolants, halogénures alcalins, etc...) par des ions lourds, les rendements de pulvérisation mesurés dans le régime électronique sont plus élevés que dans le régime nucléaire.

II.5.a Les rendements de pulvérisation en fonction du S_e

Nous avons exposé au cours de ce chapitre dans la partie «Modèles de pulvérisation théoriques», les différents comportements des rendements de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt : Y est proportionnel à $(S_e)^n$, n variant de 1 à 4. Nous allons maintenant comparer ces résultats théoriques aux résultats expérimentaux.

Nous allons tout d'abord nous intéresser à la pulvérisation du fluorure de lithium (LiF). R. Neugebauer et al. [Neugebauer 2003] ont irradié du LiF monocristallin (surface (100)) par différents types d'ions projectiles : C, N, Ar, Kr et Sn (≈ 1.4 MeV/u). La technique du temps de vol (TOF) a été employée pour la mesure des ions secondaires émis de la cible. Les conditions de vide expérimentales étaient comparables à celles que nous avons réalisées à Rio de Janeiro (conditions de vide standard, chapitre 5).

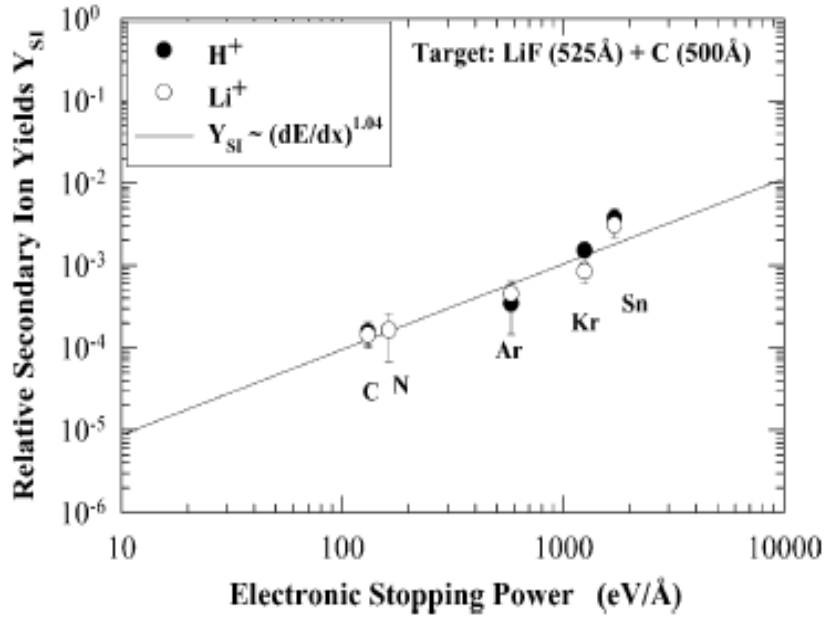


Figure II-11: Evolution des rendements de pulvérisation du Li^+ et du H^+ [Neugebauer 2003].

Les rendements du Li^+ et du H^+ varient linéairement en fonction du pouvoir d'arrêt (figure II-11), comme le prédit la pulvérisation par évaporation thermique [Johnson 1987, Evatt 1980]. Une dépendance linéaire avait été aussi trouvée pour la pulvérisation de l'oxyde d'aluminium, Al_2O_3 et du niobate de lithium, $LiNbO_3$, par des ions Cl^+ dont l'énergie varie de 5 à 25 MeV [Qiu 1982]. Nous pouvons déjà noter un premier problème concernant les modèles théoriques présentés précédemment, qui est le manque pour la clarté de la définition de "faible" et "fort" pouvoir d'arrêt (§B-II.1). Dans les chapitres 5 et 6, nous définirons et distinguerons deux régimes différents pour des faibles et des forts pouvoirs d'arrêt électronique.

W. Guthier [Guthier 1986] a étudié l'évolution des rendements de pulvérisation dans l'oxyde d'euprium, Eu_2O_3 , pour des ions projectiles Xe et U d'énergie comprise entre 0.5 et 1 MeV/u. Les rendements de pulvérisation d'Eu en fonction du pouvoir d'arrêt présentent une dépendance non linéaire ; ils varient en effet en $\left(\frac{dE}{dx}\right)^{2.4}$, figure II-12.

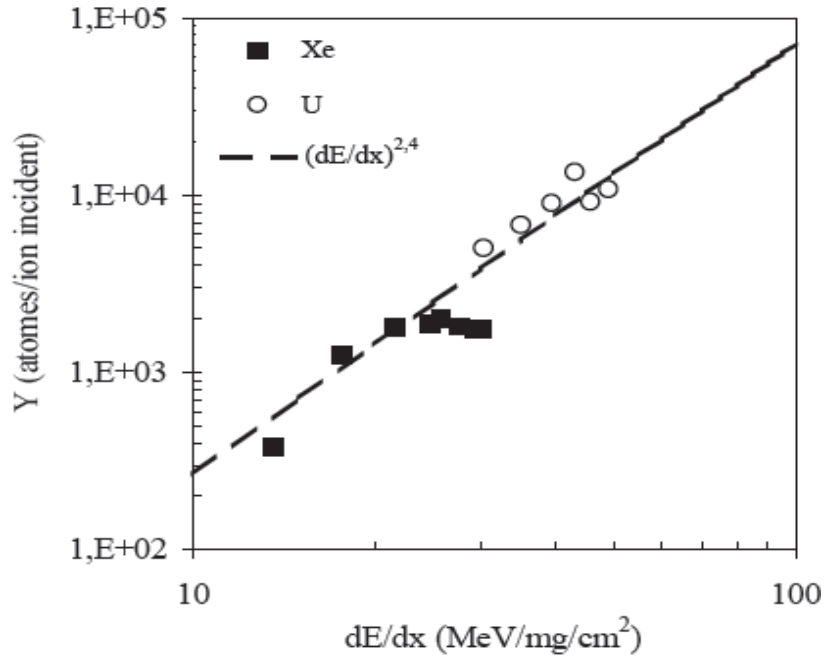


Figure II-12 : Rendements des atomes d'Eu pulvérisés d'une cible d' Eu_2O_3 en fonction du pouvoir d'arrêt [Guthier 1986].

S. Schlutig et al. [Schlutig 2001] ont étudié, par la méthode de « collecteur » (chapitre 6 §VI.3 et annexe 4), la pulvérisation du dioxyde d'uranium par des ions lourds sur les lignes Sortie Moyenne Energie (SME) et Haute Energie (HE) du GANIL. Les résultats obtenus sous incidence normale et sous incidence oblique, présentent un comportement similaire en fonction du pouvoir d'arrêt : $Y \propto \left(\frac{dE}{dx}\right)^{2.6}$ en incidence normale et $Y \propto \left(\frac{dE}{dx}\right)^{2.5}$ en incidence oblique à 60° . De plus, le rendement de pulvérisation lors d'une irradiation en incidence oblique est légèrement supérieur à celui obtenu en incidence normale (figure II-13).

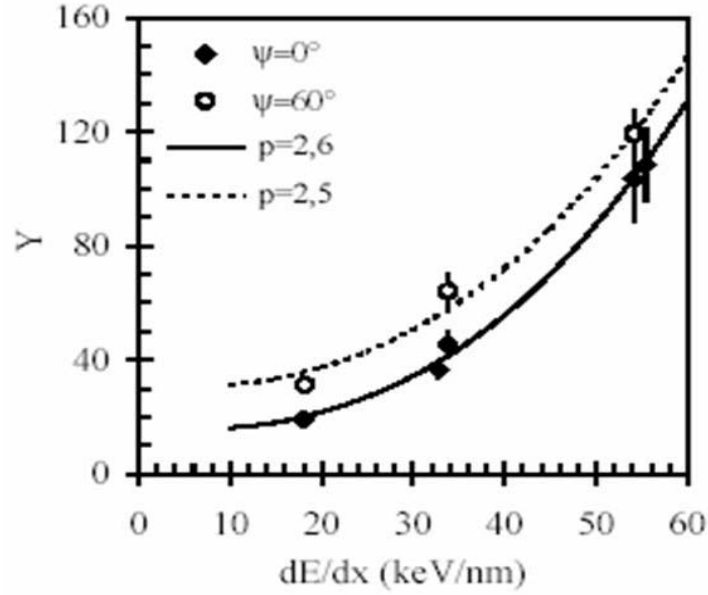


Figure II-13: Rendements des atomes d'uranium pulvérisés en fonction du pouvoir d'arrêt [Schlutig 2001].

Une dépendance fortement non-linéaire des rendements de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt est observée pour des halogénures alcalins, tel que CsI. P. Håkansson et collaborateurs [Håkansson 1982] présentent la dépendance du rendement de pulvérisation des ions positifs Cs^+ en fonction du pouvoir d'arrêt électronique (figure II-14).

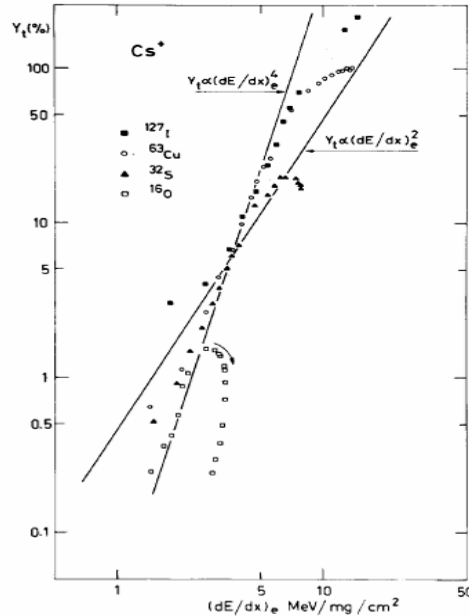


Figure II-14 : Evolution des rendements des Cs^+ en fonction du pouvoir d'arrêt électronique d'une cible de CsI par des ions ^{16}O , ^{32}S , ^{63}Cu et ^{127}I .

Les rendements varient comme $(S)_e^n$, avec $2 \leq n \leq 4$. L'effet de boucle, observé pour les ions projectiles ^{16}O , ^{32}S , et ^{63}Cu est dû à un effet de vitesse. Pour les rendements de production Y des ions secondaires de LiF par des ions lourds rapides, nous distinguerons deux régimes. Pour les pouvoirs d'arrêts électroniques inférieur à 8 keV/nm, Y est proportionnel à $(S)_e^2$. Pour les pouvoirs d'arrêts électroniques supérieur à 8 keV/nm, Y est constant (effet de saturation) (chapitre 5).

Comme nous l'avons déjà constaté lors de la description des modèles de pulvérisation électronique et comme nous venons de le découvrir au cours de ce paragraphe, les rendements des espèces pulvérisées présentent des évolutions très diverses en fonction du pouvoir d'arrêt. Ces évolutions ont été également observées dans d'autres matériaux, parmi lesquels la glace [Brown 1980], des cibles organiques comme la leucine [Della-Negra 1990, Hedin 1987].

II.5.b Evolution des rendements de pulvérisation en fonction de δ

Certaines prédictions théoriques sur la dépendance des rendements des ions émis en fonction de l'angle d'incidence δ , δ représentant l'angle d'incidence des ions projectiles par rapport à la normale à la cible, ont été proposées par Bitensky & Parilis [Bitensky 1987]. Les calculs de ces auteurs sont basés sur un mécanisme d'onde de choc et indiquent que Y est proportionnel à $(S_e)^{3/2}$, comme nous l'avons vu précédemment. Or, pour des petits angles δ , l'énergie déposée près de la surface est proportionnelle à $(\cos \delta)^{-1}$. Par conséquent, le rendement de pulvérisation, Y , devient proportionnel à $(\cos \delta)^{-1.5}$. En revanche en incidence rasante (pour des grands angles δ), le modèle prédit une dépendance de Y en $(\cos \delta)^{-1}$. Ces résultats sont en accord avec les courbes expérimentales obtenues lors de la pulvérisation de cibles d'acide aminé, d'ergosterol, de CsI et de UO_2 présentant des variations de l'exposant x de l'expression $(\cos \delta)^{-x}$ de 1 à 2 suivant l'ion éjecté et l'échantillon considéré [Schlutig 2001, Bolbach 1987, Håkansson 1982].

Des dépendances de l'exposant x entre 1 et 2 ont été aussi observées pour des cibles de LiF, de CaF_2 , d'Au et de SiO_2 par W. Assmann et collaborateurs [Assmann 2007] figure II-15.

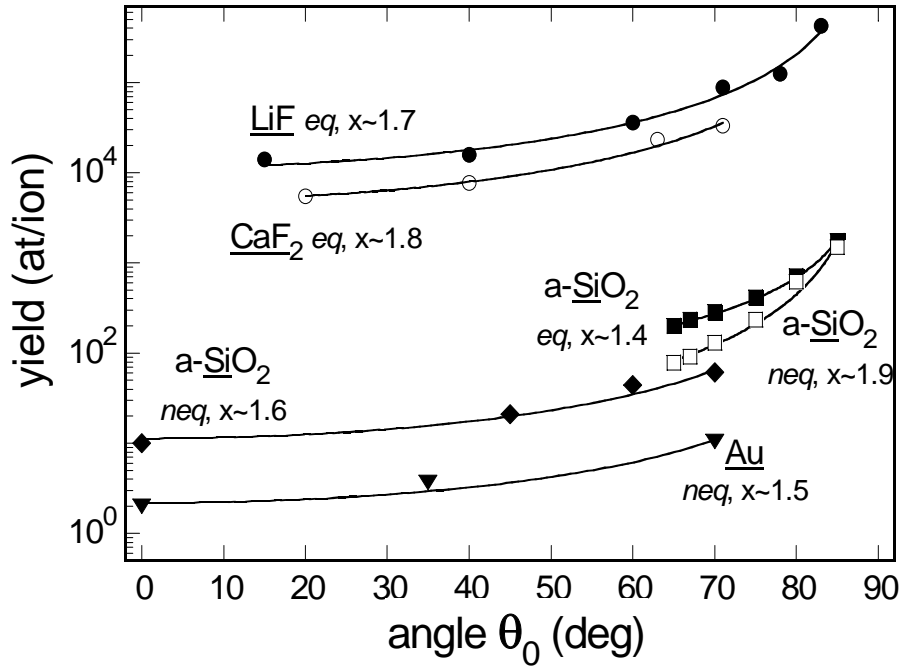


Figure II-15 : Rendement total des atomes neutres pulvérisés en fonction de l'angle d'incidence $\theta_0 (\equiv \delta)$ par rapport à la normale de la cible pour différentes cibles. Ces données ont été "ajustées" par une fonction de la forme $(\cos \theta_0)^{-x}$. Les irradiations ont été réalisées avec deux types d'ions projectiles. (Charge à l'équilibre "eq." et hors équilibre "neq") [Assmann 2007].

R.E. Johnson et collaborateurs [Johnson 1987] montrent théoriquement qu'une dépendance en $(\cos \delta)^{-1}$ est toujours observée si la distribution spatiale de l'énergie déposée électroniquement est indépendante de la profondeur traversée par le projectile et s'il n'existe aucun effet de surface. Lorsque l'ion projectile n'est pas à la charge d'équilibre ou si de nombreux électrons secondaires sont éjectés dans le vide, des déviations de l'évolution en $(\cos \delta)^{-1}$ peuvent alors apparaître.

II.5.c Les distributions en énergie

Les déterminations des distributions en énergie à partir de données expérimentales permettent de tester, valider et affiner des modèles théoriques (pointe thermique, explosion coulombienne...). J. Lenoir et al. [Lenoir 2007] ont déterminé les distributions en énergie de certains ions secondaires du LiF. La figure II-16 montre les distributions en énergie du ${}^7\text{Li}^+$ pour LiF irradié par des ions Ca^{17+} (9 MeV/u) et par des ions Xe^{21+} (17 keV/q = 350 keV) en utilisant la technique d'imagerie XY-TOF. La comparaison des distributions montre que le matériau réagit différemment à un transfert purement de pouvoir d'arrêt électronique (projectiles à grande

vitesse) et le transfert de pouvoir d'arrêt nucléaire (lorsque les différents mécanismes de dépôt d'énergie sont impliqués).

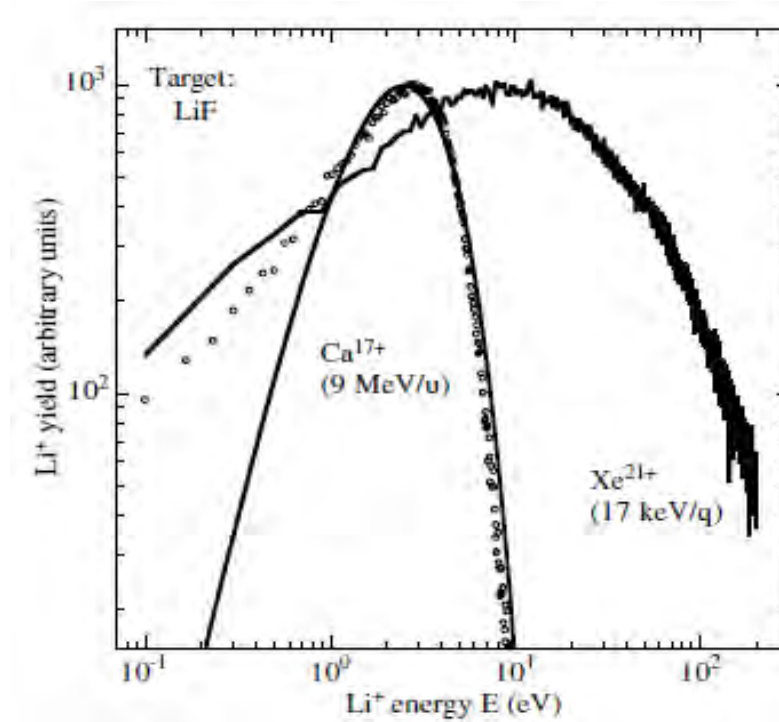


Figure II-16 : Distribution en énergie des ions $^7\text{Li}^+$ pulvérisés de la cible de LiF par des ions Ca^{17+} (360 MeV) et des ions Xe^{21+} (350 keV) [Lenoir 2007].

Une série d'expériences a été réalisée par J.A.M. Pereira et al. [Pereira 1997] visant à comprendre le mécanisme de la pulvérisation du LiF par des projectiles N^{q+} et N^{2+} de 0.075 à 7.5 MeV. De manière inattendue, les résultats ont montré la coexistence de plusieurs mécanismes qui contribuent : l'émission de Li^+ et le premier agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$ est régie principalement par l'interaction des particules chargées (ions projectiles) avec les électrons de l'atome cible (pulvérisation électronique), tandis que l'émission du F dépend surtout de l'interaction des particules chargées avec l'atome cible (pulvérisation nucléaire de cascades linéaires).

II.5.d Les distributions angulaires

Une information importante donnée par le calcul des distributions angulaires est de savoir la direction préférentielle d'éjection des particules pulvérisées, qui est une des données prédites par les différents modèles théoriques. Les distributions angulaires obtenues expérimentalement sont :

- 1) soit de la forme $(\cos \theta)^n$ avec $0.5 \leq n \leq 6$ [Lenoir 2007, Haranger 2003, Schlutig 2001, Mieskes 1999, Moshhammer 1991, Baranov 1988, Qiu 1982].
- 2) soit de la forme $e^{-m|\theta|}$, avec $1.9 \leq m \leq 5.5$ [Haranger 2003, Mieskes 1999, Baranov 1988].
- 3) soit de la somme de $\cos \theta + e^{-m|\theta|}$ [Assmann 2007, Haranger 2003].

θ est l'angle défini par rapport à la normale à la cible.

J. Lenoir et al. [Lenoir 2007] ont irradié une cible de LiF (monocristallin) par des ions rapides de haute énergie Ca^{17+} (9 MeV/u), ainsi que par des ions multichargées de basse énergie Xe^{21+} (17 keV/q = 350 keV). Les distributions angulaires des ions $^7\text{Li}^+$ pulvérisés sont préférentiellement suivant la normale à la surface du LiF, avec une puissance $n \approx 2.5 - 4$ du cosinus. Nous utiliserons la même fonction, $(\cos \theta)^n$, pour reproduire les distributions des ions secondaires de LiF par ions lourds rapides (n compris entre 1.1 et 4.5). Si l'on s'intéresse à l'allure des distributions angulaires, il est à noter qu'il existe un problème pour le modèle associé à l'évaporation thermique. Ce dernier propose une distribution angulaire de la forme $(\cos \theta)^1$, ce qui n'est pas le cas de la distribution angulaire expérimentale des ions de $^7\text{Li}^+$ et $(\text{LiF})\text{Li}^+$ variant en $(\cos \theta)^n$ avec $n > 1$ [Lenoir 2007, et chapitre 6].

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les grandes lignes des modèles de pulvérisation ainsi que les principaux résultats expérimentaux. L'ensemble des données obtenues dans ces différentes études nous a amené aux conclusions suivantes :

- 1) La plupart des résultats expérimentaux de pulvérisation sont essentiellement axés sur l'étude d'un seul paramètre (soit l'émission des particules pulvérisées, soit l'évolution des rendements de pulvérisation), ne permettant pas de tester l'ensemble des prédictions de chaque modèle de pulvérisation.
- 2) Les modèles théoriques (pointe thermique, choc et explosion coulombienne) ne proposent pas de critères suffisamment discriminants pour trancher expérimentalement.

Dans cette thèse, nous allons comparer nos données expérimentales avec les modèles théoriques existants, afin de comprendre le processus générant l'émission des ions secondaires.

Chapitre 3 : Dispositif expérimental

Introduction

Les irradiations ont été effectuées au GANIL (“Grand Accélérateur National d’Ions Lourds”). Dans un premier temps, nous décrirons brièvement le fonctionnement de cet accélérateur, et plus précisément de la ligne Moyenne Energie. Dans un second temps, nous présenterons le principe de l’imagerie XY-TOF et le dispositif expérimental.

A - Production des ions projectiles

I. Le GANIL

Le GANIL est un laboratoire de recherche fondamentale en physique nucléaire et interdisciplinaire qui dépend du Commissariat à l’Energie Atomique (CEA) et du Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS). Le GANIL est un laboratoire d’accueil qui reçoit des centaines de physiciens extérieurs chaque année.

Les accélérateurs du GANIL sont représentés sur la figure III-1. Les faisceaux d’ions multichargés sont produits par des sources ECR (“Electron Cyclotron Resonance”). Ils sont accélérés une première fois par les cyclotrons injecteurs (C01 ou C02). Ils sont ensuite injectés dans le premier Cyclotron à Secteurs Séparés CSS1, qui accélère les ions à une énergie de l’ordre de 10 MeV/u. Un éplucheur d’épaisseur adéquate permet d’augmenter la charge des ions q . L’un des états de charge est dirigé vers le second cyclotron et un autre état de charge vers la salle D1 (Sortie Moyenne Energie). Les ions accélérés par le deuxième Cyclotron à Secteurs Séparés CSS2 ont à la sortie une énergie jusqu’à 95 MeV/u.

Le GANIL produit des faisceaux d’ions allant du carbone à l’uranium, d’énergie pouvant atteindre 95 MeV/u pour le carbone et 29 MeV/u pour l’uranium.

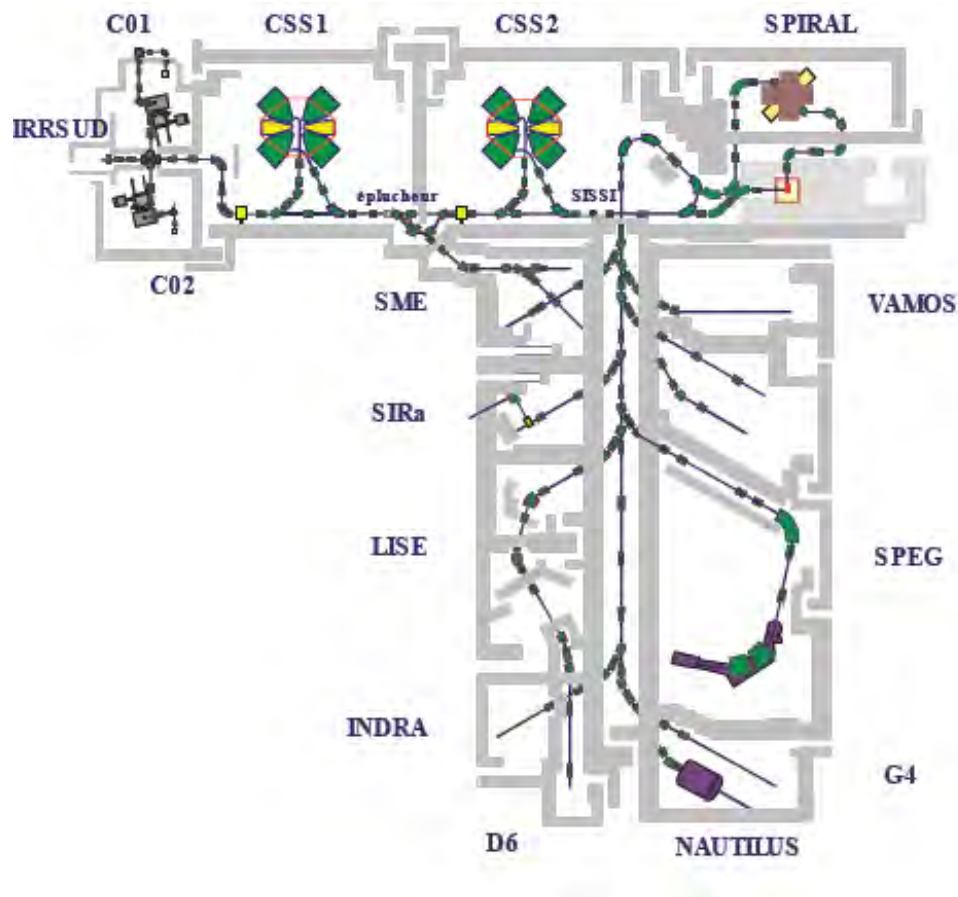


Figure III-1 : Schéma de principe du GANIL.

II. Aire expérimentale D1

Toutes les expériences ont été réalisées dans la salle D1 (figure III-2). Elle est constituée de trois lignes d'irradiation. Deux d'entre elles sont des lignes de Moyenne Energie délivrée par CSS1 (typiquement 10 MeV/u). Il s'agit de la ligne IRASME destinée principalement à l'irradiation d'échantillons avec balayage, et de la ligne dite de "physique atomique" (faisceau achromatique). La troisième ligne IRABAT délivre des ions de haute énergie utilisés notamment en radiobiologie.

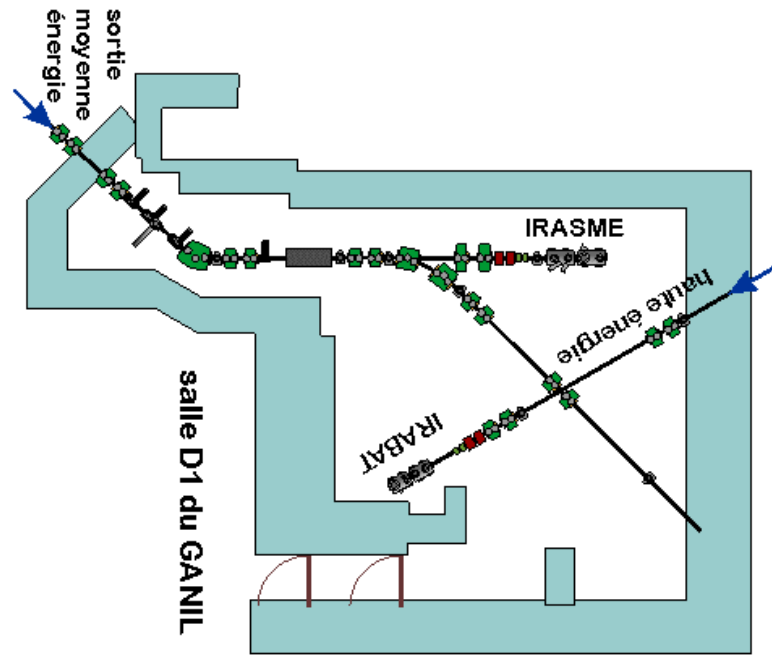


Figure III-2 : Salle D1 du GANIL.

B - Chambre d'irradiation

Le dispositif expérimental AODO [Hijazi 2011] a été installé sur la ligne de faisceau “physique atomique” de la Sortie Moyenne Energie (SME) du GANIL. L’ensemble du dispositif est schématisé sur la figure III-3.

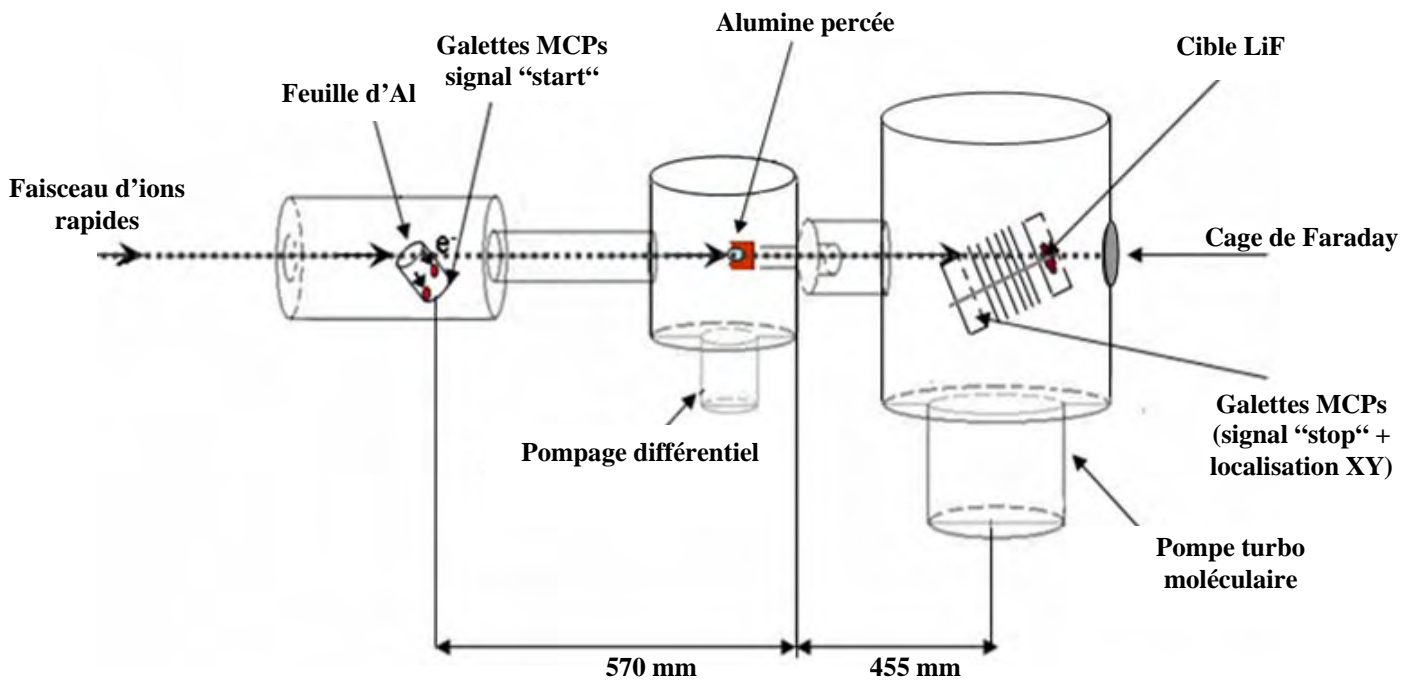


Figure III-3 : Schéma de l'ensemble de l'expérience.

Le faisceau d'ions projectiles traverse le "détecteur projectile" qui est principalement constitué d'une feuille d'aluminium (épaisseur $\approx 0.8 \mu\text{m}$) et d'une paire de galettes à micro canaux ("Micro Channel Plates", MCP). Ce détecteur permet de mesurer le nombre d'ions projectiles incidents, et de générer un signal "start" pour mesurer le temps du vol (TOF) (§ II.5). Le faisceau entre ensuite dans un étage de pompage différentiel ($p \approx 5 \times 10^{-8}$ mbar) devant la chambre ultravide ($p \approx 2 \times 10^{-9}$ mbar). Une alumine percée ($\varnothing = 3 \text{ mm}$) est utilisée en amont de la chambre de collision pour aligner le faisceau. Lors du réglage du faisceau, celui-ci traverse le spectromètre, sans la cible et sans support, afin de pouvoir mesurer son intensité avec une cage de Faraday située à l'extrémité de l'enceinte (figure III-3). Pour les mesures des ions secondaires, la cible est transférée de la chambre de préparation vers le spectromètre. La figure III-4 présente une photographie de notre montage sur la ligne du faisceau.

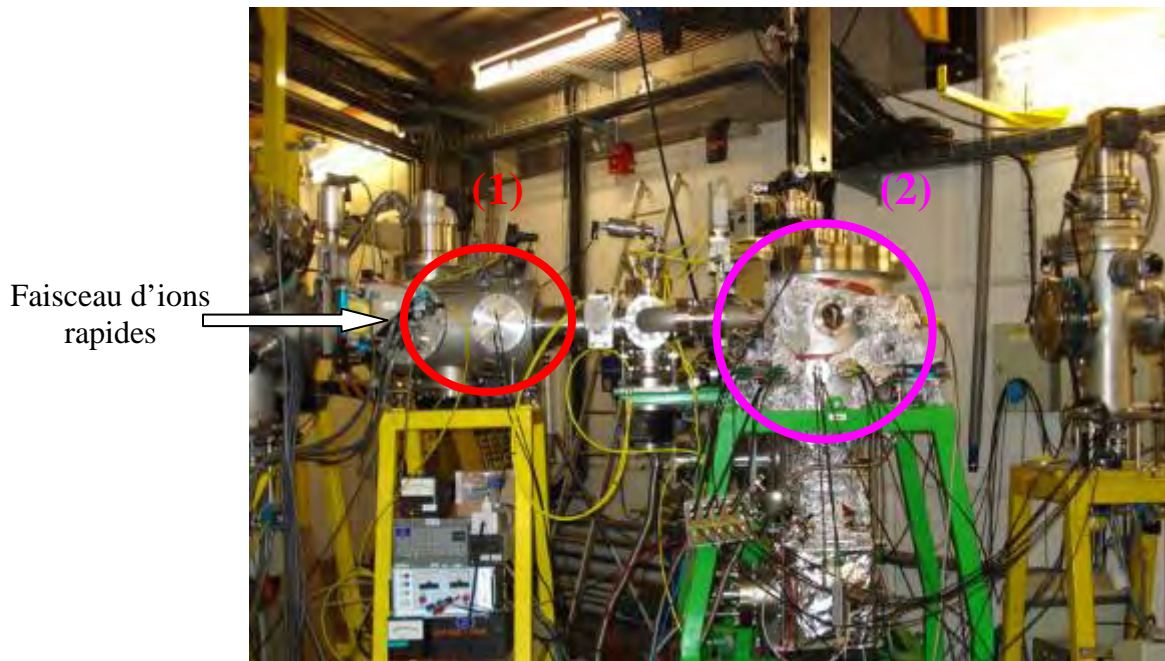


Figure III-4 : Ligne de faisceau SME (Sortie Moyenne Energie), (1) chambre du détecteur projectile, (2) chambre du détecteur XY-TOF.

I. Système Ultra-Vide AODO

Le dispositif AODO est constitué (figure III-5) de :

- 1) Une chambre d'irradiation comportant :
 - a) Deux pompes turbo-moléculaires en série pour assurer un ultra vide.
 - b) Un détecteur d'ions secondaires en positions XY et en temps de vol TOF.
- 2) Une chambre de préparation avec :
 - a) Une pompe ionique et trois pompes turbo-moléculaires
 - b) Un évaporateur et un dispositif LEED ("Low Energy Electron Diffraction")
- 3) Une barre de transfert entre les deux chambres à Ultra-Vide.

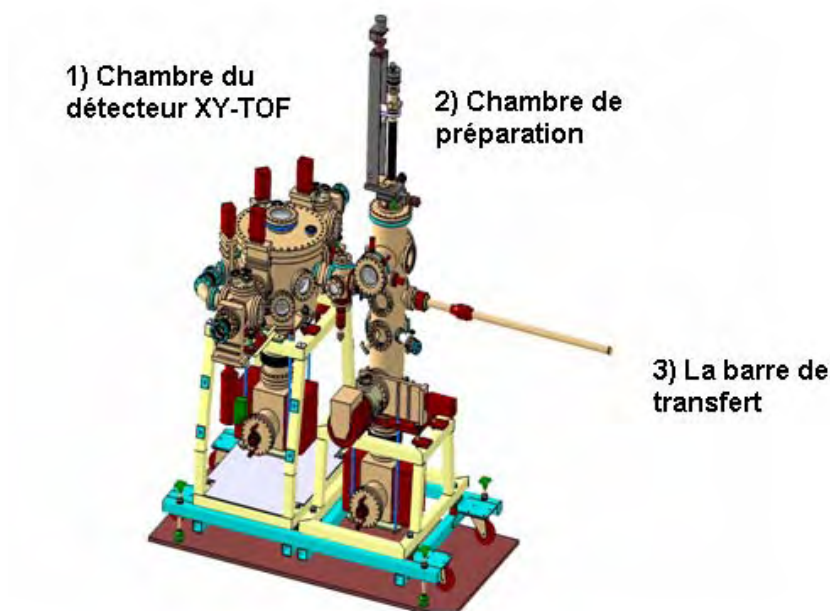


Figure III-5 : Système Ultra-Vide AODO : (1) chambre d'irradiation (2) chambre de préparation des cibles et (3) barre de transfert.

Ce système nous permet d'étudier la pulvérisation avec une cible préparée et contrôlée, c'est-à-dire propre et sans contamination surfacique.

I.1 Préparation des cibles de LiF monocristallin-polycristallin

La cible de LiF monocristallin est réalisée à partir d'un barreau de LiF⁵. Celui-ci a la forme d'un cylindre de diamètre $\varnothing = 15$ mm. La cible est clivée dans la direction (100) pour toutes les expériences. Son épaisseur est de 5 mm. Après clivage, cette cible a été initialement disposée sur la barre de transfert dans la chambre de préparation. Avant les processus d'étuvage, la pression à l'intérieur des deux chambres est d'environ $p \approx 10^{-8}$ mbar.

Le dispositif AODO a été étuvé à une température de $T \approx 130$ °C pendant deux jours. Lors de l'étuvage, la pression est remontée à $p \approx 10^{-7}$ mbar. Après plusieurs cycles d'étuvage, la pression de base à l'intérieur des deux chambres est d'environ $p \approx 2 \times 10^{-9}$ mbar.

La cible de LiF polycristallin est obtenue en évaporant de la poudre de LiF sur un substrat de cuivre. Cette évaporation est réalisée "in-situ" dans des conditions d'ultra vide. L'épaisseur de la cible est déterminée via une balance à quartz.

Après le réglage du faisceau, la cible est transférée vers la chambre d'irradiation XY-TOF en utilisant la barre de transfert et insérée dans une plaque "support" située au centre de la chambre d'irradiation (figure III-6) correspondant au point de collision.

II. Le spectromètre du temps de vol (TOF) et des positions (XY)

II.1 Détecteur des ions secondaires

Le détecteur (figure III-6) comporte quatre parties distinctes :

- (1) l'emplacement de la cible ;
- (2) une zone d'extraction des ions secondaires pulvérisés ;
- (3) deux galettes à micro canaux ("Micro Channel Plates", MCP) accolées pour la détection des ions et l'amplification du signal électrique collecté ;
- (4) une anode à lignes à retard pour la localisation (XY);

⁵ LiF acheté chez Korth Kristalle GMBH (Kiel, Allemagne).

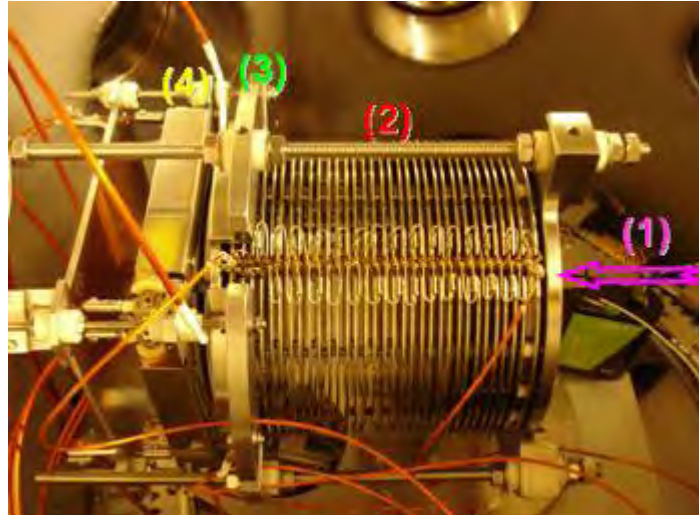


Figure III-6 : Photographie du détecteur XY-TOF des ions secondaires.

II.2 Extraction des ions secondaires

Les ions sont envoyés sur la cible de LiF avec une énergie de l'ordre de 10 MeV/u (figure III-7).

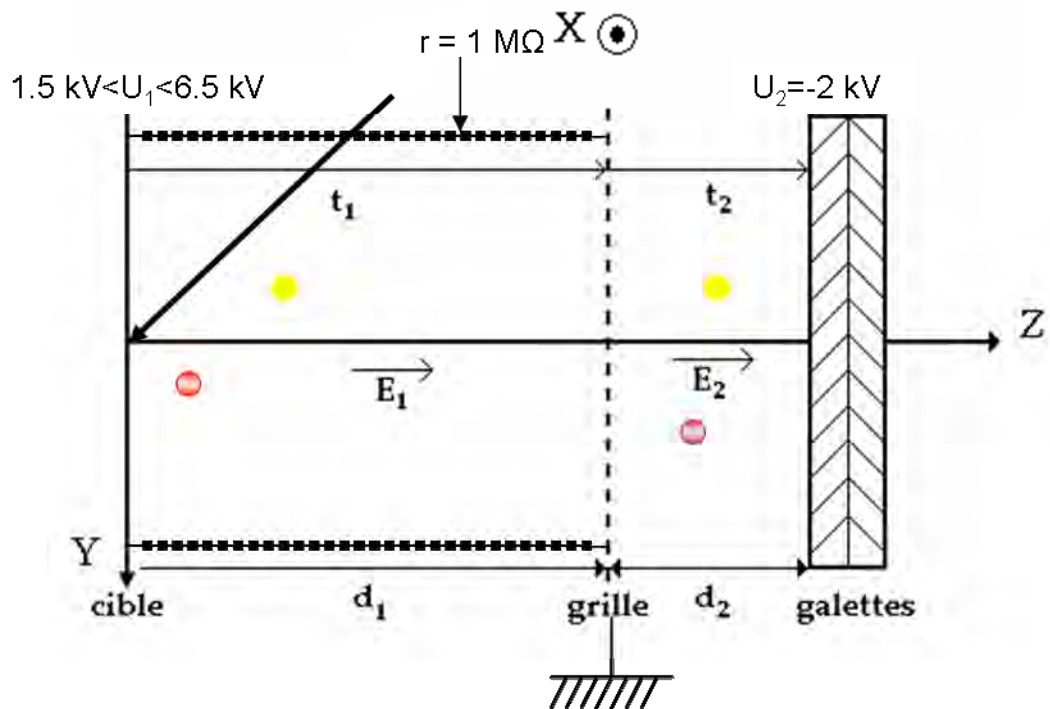


Figure III-7 : Principe de l'extraction des ions secondaires, de la polarisation de la cible et des galettes (plan YZ).

La surface de la cible est dans le plan de son support. Trente électrodes uniformément réparties, reliées entre elles par un pont de résistance ($r = 1 \text{ M}\Omega$) assurent l'homogénéité du champ entre le support de la cible et la grille d'extraction (voir aussi figure III-6). Dans ces conditions, les lignes des champs sont alors bien définies. Les ions secondaires sont extraits par un premier champ électrique uniforme dû à une différence de potentiel U_1 ($1.5 \text{ kV} < U_1 < 6.5 \text{ kV}$) entre la cible et la grille ($d_1 = 103.4 \text{ mm}$). L'ion émis traverse cette première zone en un temps t_1 . Les ions secondaires sont ensuite post accélérés en direction des galettes sur une distance $d_2 = 12.0 \text{ mm}$ par une tension $U_2 = -2 \text{ kV}$, afin d'augmenter l'efficacité de détection. L'ion traverse cette seconde zone en un temps t_2 .

II.3 Détection des ions et amplification du signal

Les galettes à micro canaux permettent de détecter les ions secondaires ($\varnothing = 86 \text{ mm}$). Ces galettes sont constituées de canaux d'un diamètre de $25 \text{ }\mu\text{m}$, qui sont inclinés de 60° par rapport à la normale des faces d'entrée afin de garantir que les ions tombent sur les parois de ces canaux et créent une avalanche d'électrons secondaires (figure III-8).

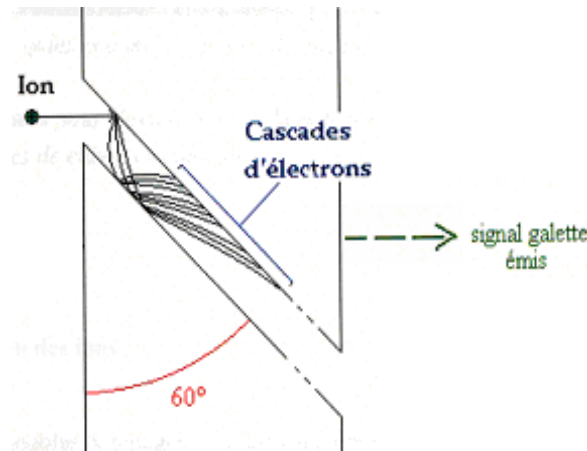


Figure III-8 : Schéma de l'amplification du signal.

Le gain total (l'amplification avec les deux galettes) est de l'ordre de 10^6 - 10^7 électrons par particule incidente (ions secondaires, photons). L'impulsion ainsi générée à partir de la face arrière des galettes est utilisée comme signal "stop" pour la mesure du temps de vol. Cette avalanche d'électrons secondaires est ensuite collectée sur l'anode filaire sensible en position (imagerie XY).

II.4 Efficacité des galettes à micro-canaux

Le rendement d'une galette n'est pas de 100 %. Elle n'est active que si la particule frappe l'intérieur d'un canal et mène à l'émission d'au moins un électron. L'efficacité d'une galette dépend donc en partie de la surface couverte par les canaux. Le rendement "géométrique", $\epsilon_{\text{geom.}}$, de la galette est égal à :

$$(\text{surface des trous})/(\text{surface totale}) = 57 \% \text{ [Hamamatsu, Krems 2005]}$$

L'efficacité des galettes dépend aussi de la probabilité d'émettre au moins un électron secondaire et de créer une avalanche d'électron secondaire. C'est l'efficacité statistique " $\epsilon_{\text{stat.}}$ ".

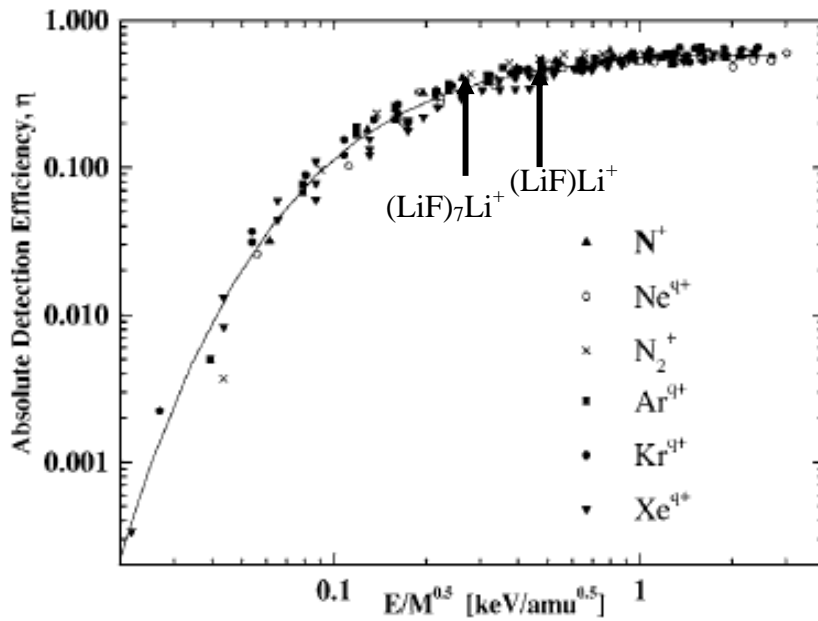


Figure III-9 : Efficacité de détection des galettes de micro-canaux en fonction de $E/M^{0.5}$ ($\text{keV}/\text{u}^{0.5}$) [Krems 2005].

Dans le cas d'une galette neuve, cette efficacité est donnée en fonction de l'énergie cinétique E (keV) sur la racine de la masse M (u) (figure III-9) pour différents faisceaux [Krems 2005]. Par exemple, l'efficacité de détection totale η de $(\text{LiF})\text{Li}^+$ et $(\text{LiF})_7\text{Li}^+$ varie respectivement de 0.50 à 0.32. Cet écart d'efficacité de détection entre le premier agrégat et les gros agrégats a été pris en compte dans les calculs des rendements des ions secondaires.

II.5 Temps de vol TOF (Time Of Flight)

La mesure du temps de vol (TOF) des ions pulvérisés, c'est-à-dire l'intervalle de temps entre le moment où l'ion est pulvérisé et le moment où il est détecté sur les galettes requiert deux signaux : un signal "start" et un signal "stop".

Le signal "start" est généré par le détecteur projectile lors du passage de l'ion incident à l'intérieur de celui-ci (signal appelé MCP PROJ) (figure III-10).

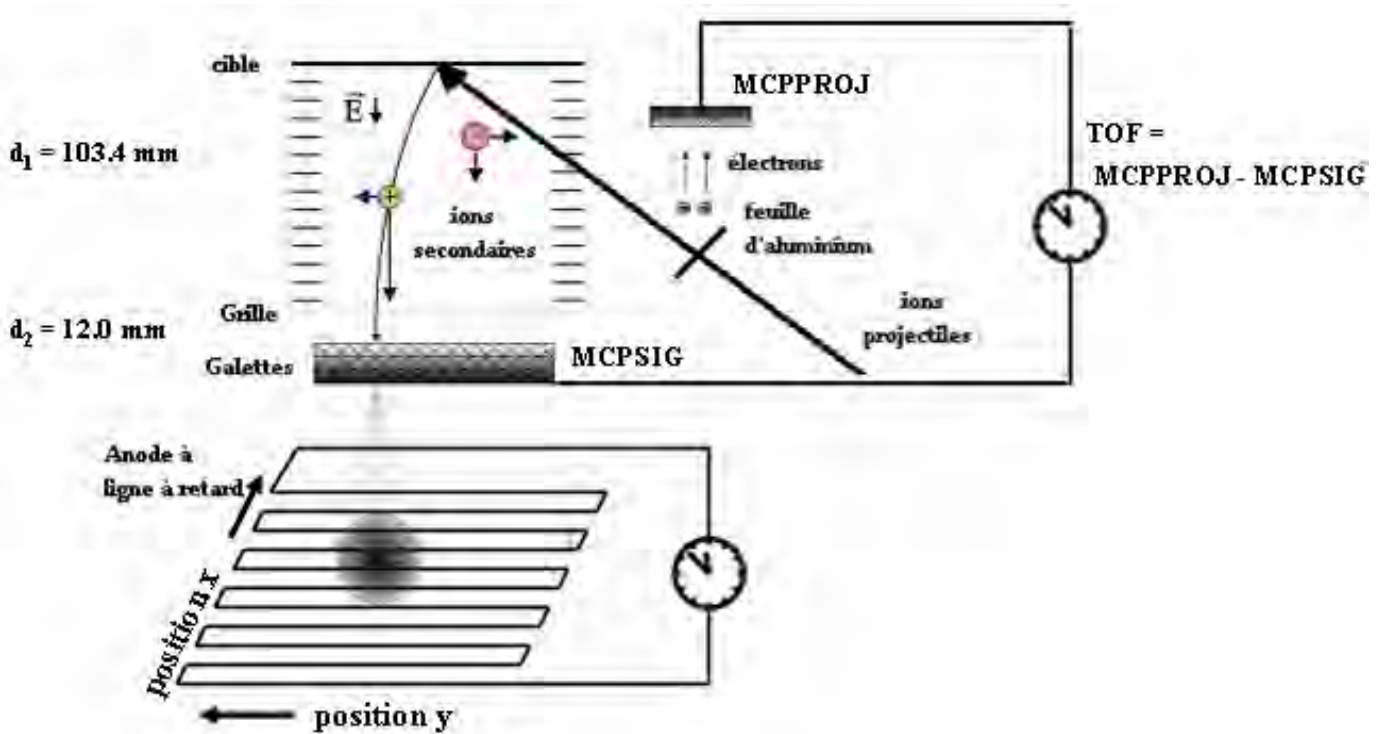


Figure III-10 : Schéma des détecteurs pour la mesure du TOF sur la SME.

Le signal "stop" est généré par les galettes à micro-canaux MCPs du détecteur des ions secondaires (signal appelé MCP SIG) (§ II.2). Le temps de vol est déterminé de la manière suivante : $\text{TOF} = \text{MCP PROJ} - \text{MCP SIG}$ (figure III-10).

II.6 Localisations des ions : Anode à lignes à retard

Les électrons engendrés par les galettes sont collectés par les anodes filaires. Ces électrons génèrent un signal sur chaque ligne de retard. Ces signaux correspondent au temps de propagation entre le point d'impact sur l'anode et chaque extrémité de chaque fil. La vitesse de propagation du signal étant la même dans les deux directions, les deux signaux récupérés sur chaque ligne nous permettent de déterminer l'endroit de l'impact.

L'anode est constituée de deux doubles bobinages : un horizontal et un vertical (figure III-11a). Huit signaux sont, au total, récupérés sur l'anode : quatre signaux dits "références" provenant des lignes "référence" et quatre autres dits "signaux" provenant des lignes "signal".

Les signaux récupérés sur l'anode sont (figure III-11a) :

- X_{1sig} et X_{2sig} pour la ligne "signal" verticale ;
- X_{1ref} et X_{2ref} pour la ligne "référence" verticale ;
- Y_{1sig} et Y_{2sig} pour la ligne "signal" horizontale ;
- Y_{1ref} et Y_{2ref} pour la ligne "référence" horizontale ;

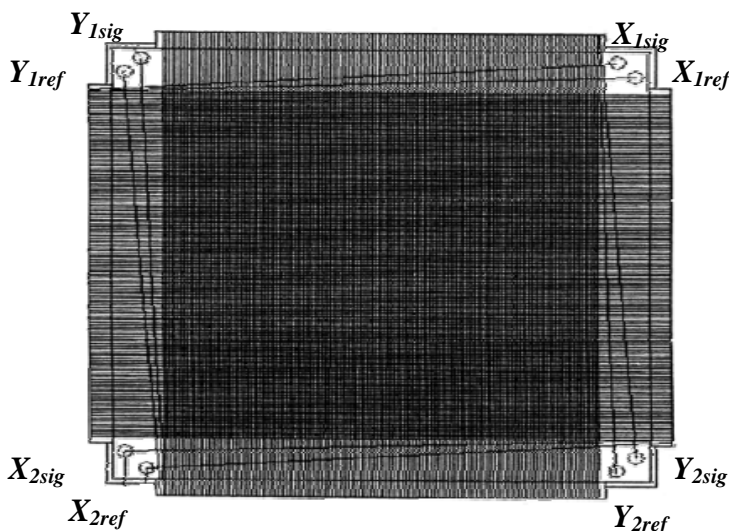


Figure III-11 : a) L'anode à ligne à retard et b) L'ensemble des MCPs et l'anode à ligne à retard.

Le potentiel des lignes “signaux” (400 V) est supérieur à celui des “références” (350 V). Les électrons vont donc être préférentiellement détectés sur les lignes “signaux”. Les impulsions correspondantes sont donc plus intenses que celles des lignes “références”.

Ces signaux sont envoyés vers un boîtier électronique (opération différentiel TP-104, figure III-12), nous permettant de faire la soustraction entre les signaux “référence” et “signal” de chaque bobinage afin d’éliminer le bruit de fond et les signaux parasites.

Il ne reste donc plus que quatre signaux à traiter:

- X_1 qui correspond à $X_{1sig}-X_{1ref}$;
- X_2 qui correspond à $X_{2sig}-X_{2ref}$;
- Y_1 qui correspond à $Y_{1sig}-Y_{1ref}$;
- Y_2 qui correspond à $Y_{2sig}-Y_{2ref}$;

Ces signaux seront ensuite traités par l’électronique de détection (§ III).

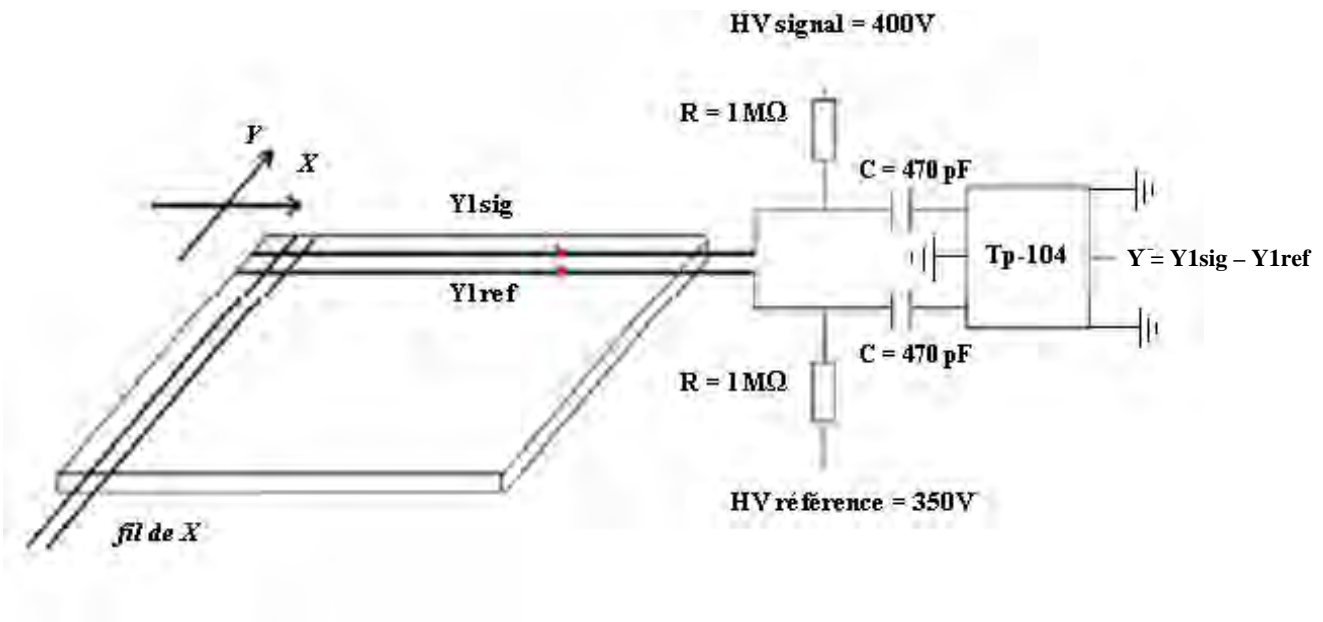


Figure III-12 : Opération différentiel à partir de TP-104 de signal $Y = Y_{1sig} - Y_{1ref}$.

III. Electronique de détection et le système d'acquisition

Il y a six signaux à acquérir et traiter : le signal “start” (MCPSIG), le signal “stop” (MCPPROJ) et les quatre signaux pour la localisation (X_1 , X_2 , Y_1 , Y_2).

Après la détection des signaux (galettes, anodes), ceux-ci sont bien souvent atténués lors de leur propagation dans les câbles. Ils sont ensuite amplifiés par des amplificateurs rapides (modèle Lecroy FTA 810).

Afin d’obtenir des mesures de temps précises, indépendantes des temps de montée et des amplitudes des signaux d’entrées, ces derniers sont envoyés vers des Discriminateurs à Fraction Constante (“Constant Fraction Discriminators“, CFD, modèle Ortec 935). Outre cette première propriété, ce module permet aussi de s’affranchir d’éventuels rebonds du signal dus aux problèmes d’adaptation d’impédance des connexions. Il génère aussi un signal analytique standard (format “NIM“, signal négatif rapide de - 0.8 V). Le schéma électronique est présenté sur la figure III-13. Tous les CFD ont un réglage qui permet d’avoir une résolution de déclenchement inférieure à la nanoseconde.

Tous les signaux sortant des CFD sont convertis en format ECL puis envoyés sur le TDC (“Time to Digital Convertor“, TDC, modèle 3377 de Lecroy).

Le TDC est utilisé pour la mesure et le codage d’intervalles de temps. Ce module possède 32 voies. Chaque voie peut enregistrer jusqu’à 16 “coups” (hits) par événement (sur une échelle de temps de 16.3 μ s). Un événement correspond à un “start” et au moins un “stop”.

Schéma électronique
d'acquisition AODO

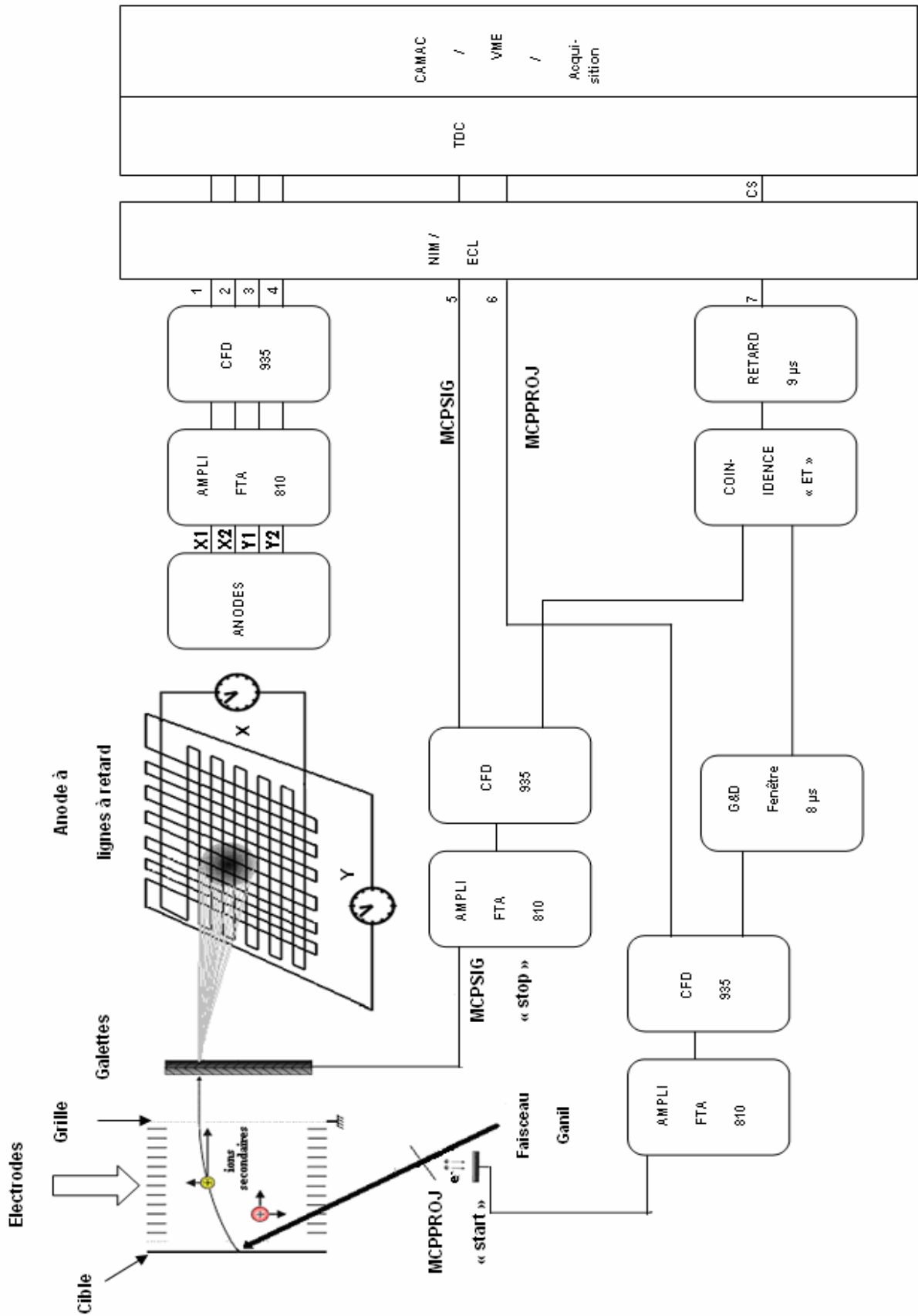


Figure III-13 : Schéma de l'électronique de détection.

Pour sélectionner les événements physiques intéressants correspondant à l'existence simultanée d'un signal "start" et d'au moins un signal "stop", une fenêtre de $8\ \mu\text{s}$ est générée par un module "Gate and Delay" à partir du signal "start" (figure III-13). Cet intervalle de temps ($8\ \mu\text{s}$) assure la prise en compte de tous les signaux "stop". Cette fenêtre ainsi que le signal "stop" sont ensuite connectés à un module de coïncidence en mode "et". Si le signal "stop" est présent en même temps que la fenêtre, il est retardé de $9\ \mu\text{s}$. Ce signal est ensuite envoyée sur l'entrée "common stop" du TDC (figure III-14). En mode "common stop", les données sont gardées en mémoire, sur une fenêtre glissante de $16.3\ \mu\text{s}$, puis envoyées vers le CAMAC (Computer Automated Measurement And Control)/VME (Versa Module Europa) et la station d'acquisition (LINUX).

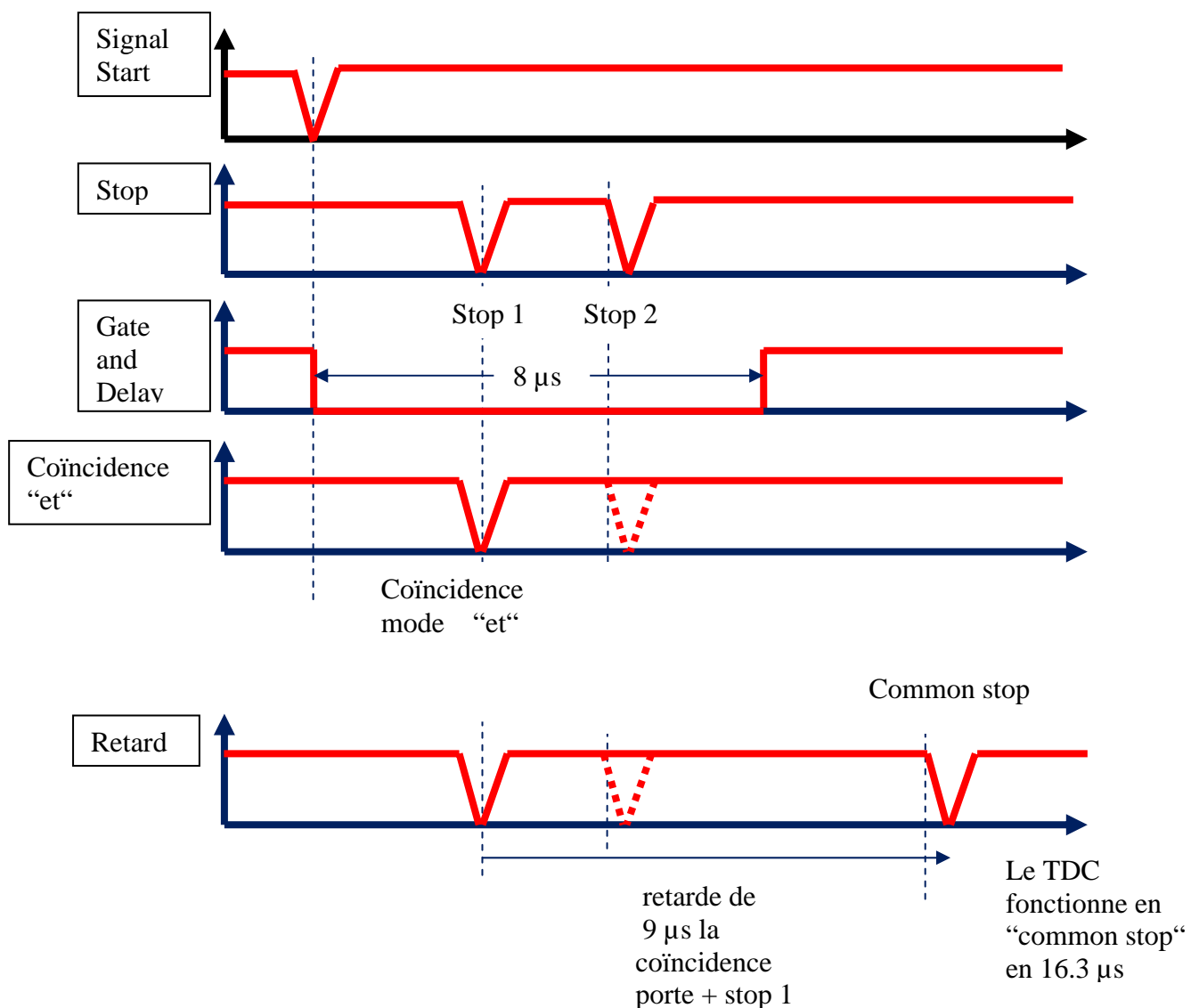


Figure III-14 : Chronogrammes de la sélection des événements.

IV. Traitement avec le programme ROOT et C⁺⁺

L'analyse des données est réalisée à l'aide du logiciel ROOT (sous LINUX) développé au CERN, (<http://root.cern.ch>). Les fichiers de données, issus de l'acquisition GANIL, sont des fichiers de type ".dat" (format IN2P3, de taille 200 Mega Bytes). Ils sont ensuite transformés par un logiciel du GANIL ("GANIL Root Utilities") afin de convertir les données en format ".root" (Arbres "TTree"). Ensuite, dans le logiciel ROOT, les données sont étalonnées en position et en temps (programme en C⁺⁺), afin de déterminer les distributions en masse, en énergie et en angle des ions pulvérisés. La figure III-15 montre les différentes étapes de traitement des données de l'acquisition de GANIL.

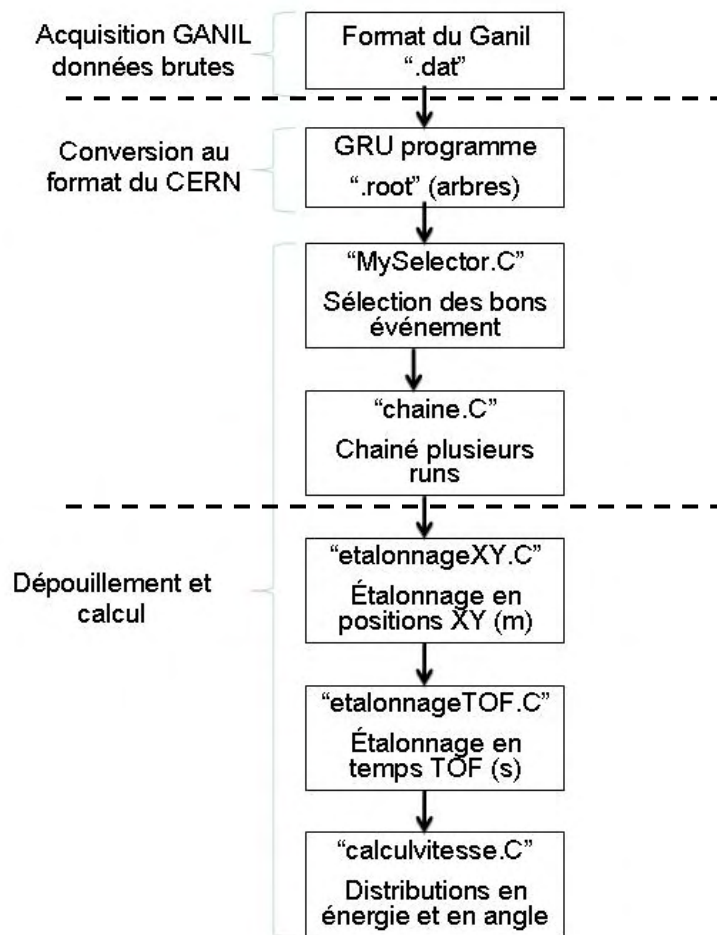


Figure III-15 : Schéma de traitement des données de l'acquisition du GANIL.

C- Système du temps de vol (Van de Graaff – PUC-Rio de Janeiro)

I. Introduction

Dans le cadre d'un Programme Hubert Curien (PHC) CAPES/COFECUB (action ph 569/07) avec le Brésil, nous avons réalisé des expériences complémentaires à celles réalisées au GANIL. Deux dispositifs différents ont été employés pour les expériences réalisées au département de physique de l'université catholique PUC de Rio de Janeiro (avec le groupe du Professeur Enio Forta da Silveira) :

- i) le VDG "Van de Graaff";
- ii) le PDMS "Plasma Desorption Mass Spectrometer" [Macfarlane 1976];

Ces dispositifs permettent d'explorer d'autres domaines :

- 1- des énergies plus basses que celles du GANIL-SME
- 2- l'effet de la charge du projectile
- 3- l'effet des différentes structures des cibles de LiF (polycristallin, monocristallin).

Dans ce cadre, nous avons irradié un échantillon de LiF polycristallin enrichi en ^7Li et évaporé sur un substrat de cuivre avec un système de mesure du temps de vol. Ces expériences ont été réalisées en vide standard. Le dispositif VDG permet d'étudier la pulvérisation en irradiant la cible avec deux sources d'ions différents : (1) un faisceau délivré par l'accélérateur de Van de Graaff et (2) une source du Californium 252 qui émet des fragments de fission d'une énergie moyenne de 100 MeV et masse moyenne de 125 (figure III-17, configuration 1), alors que le PDMS comporte seulement la source du Californium (figure III-17, configuration 2).

II. Faisceaux délivrés par l'accélérateur Van de Graaff

Les ions d'azote N^+ ont été délivrés par l'accélérateur Van de Graaff (énergie des ions : 0.107 MeV/u). Le faisceau de N^+ est ensuite accéléré par une tension de 1.5 MV. L'énergie spécifique est donc de 0.107 MeV/u. Après une première analyse par un aimant, le faisceau traverse une section de ligne dont le vide est suffisamment élevé pour permettre un épluchage des N^+ , et la production de charges allant de $q = 2$ à $q = 6$.

III. Fragments de fissions et PDMS

La source du Californium ^{252}Cf (activité = 20 microcuries) émet simultanément deux fragments de fission en directions opposées. Ceci permet d'utiliser un fragment pour générer un signal "start" par les électrons secondaires du détecteur projectile. L'autre fragment est utilisé comme projectile pour bombarder la cible. Les ions secondaires émis de cette cible permettent de générer un signal "stop" par les galettes. Cette source est montée sur le dispositif du VDG et sur le PDMS. La figure III-16 [Schmitt 1965] montre le spectre de distribution en masse des fragments du ^{252}Cf . Les fragments de fission ont des masses allant de $m_1 = 82$ à $m_2 = 167$. La masse moyenne des ces fragments de fission est $m = 125$ avec une énergie moyenne de ≈ 100 MeV [Ponciano 2001].

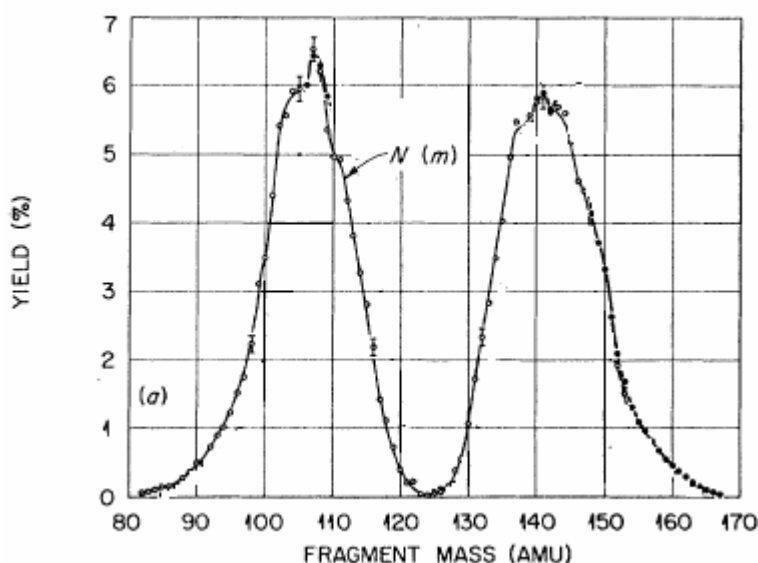


Figure III-16 : Rendement des Fragments de Fission du Californium 252.c

IV. Dispositif expérimental

Le dispositif utilisé lors des campagnes d'expériences à Rio est présenté sur la figure III-17 (configuration 1). Ce dispositif présente l'avantage de pouvoir utiliser la source FF- ^{252}Cf et le faisceau N^{q+} de Van de Graaff sous les mêmes conditions expérimentales. L'angle d'impact de projectile est de 45° par rapport à la normale de la surface de la cible.

La cible et le substrat métallique sont suffisamment minces pour être traversés par le faisceau. Les électrons produits à l'arrière de la feuille sont accélérés vers un détecteur à micro-canaux (MCP) qui délivre un TOF "start" signal. Le projectile est ensuite détecté par un second détecteur à micro-canaux MCP, afin de mesurer les nombres d'ions projectiles incidents.

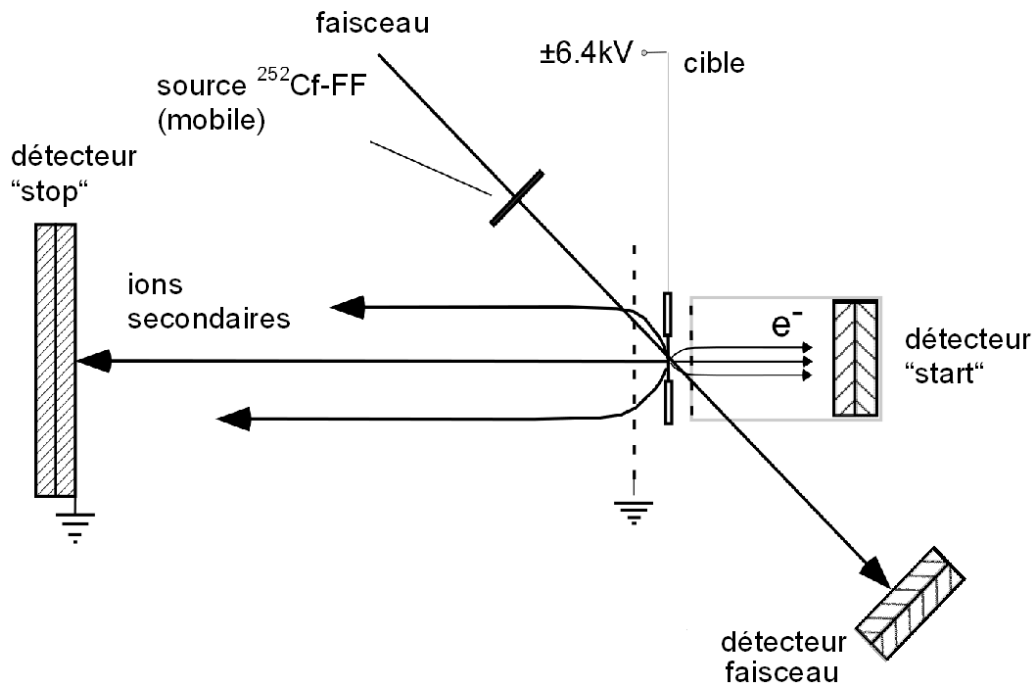
Les ions secondaires émis de la cible sont accélérés par un champ électrique de + 6.4 kV (pour détecter les ions positifs) ou de - 6.4 kV (pour détecter les ions négatifs) sur une distance de 7.0 mm entre la cible et la grille. Ils sont ensuite détectés par une autre paire de MCP qui génère un TOF "stop" signal. Les signaux "start" et "stop" sont utilisées pour la détermination de temps du vol (TOF).

V. Préparation de cible LiF polycristalline

Une couche de LiF enrichi en ^7Li (99 %) a été évaporée sur une feuille de Cuivre Cu ou d'Aluminium Al (épaisseur $\approx 3 \mu\text{m}$). L'épaisseur de cette couche est de $\approx 0.1 \mu\text{m}$ (elle est contrôlée et mesurée pendant la préparation). Il est à noter que les cibles ne sont pas produites de la même manière pour les expériences sur l'accélérateur VDG et sur le dispositif de type PDMS (voir chapitre 4). Les cibles de ce dernier ont été produites avec un système de vide standard à l'université de PUC-Rio. Pour les expériences sur l'accélérateur VDG, les cibles ont été aussi produites à l'université de PUC-Rio, mais dans un système d'ultravide.

La pression de base dans les chambres pendant les expériences était de $p \approx 10^{-6}$ mbar.

a) Configuration 1 : VDG



b) Configuration 2 : PDMS

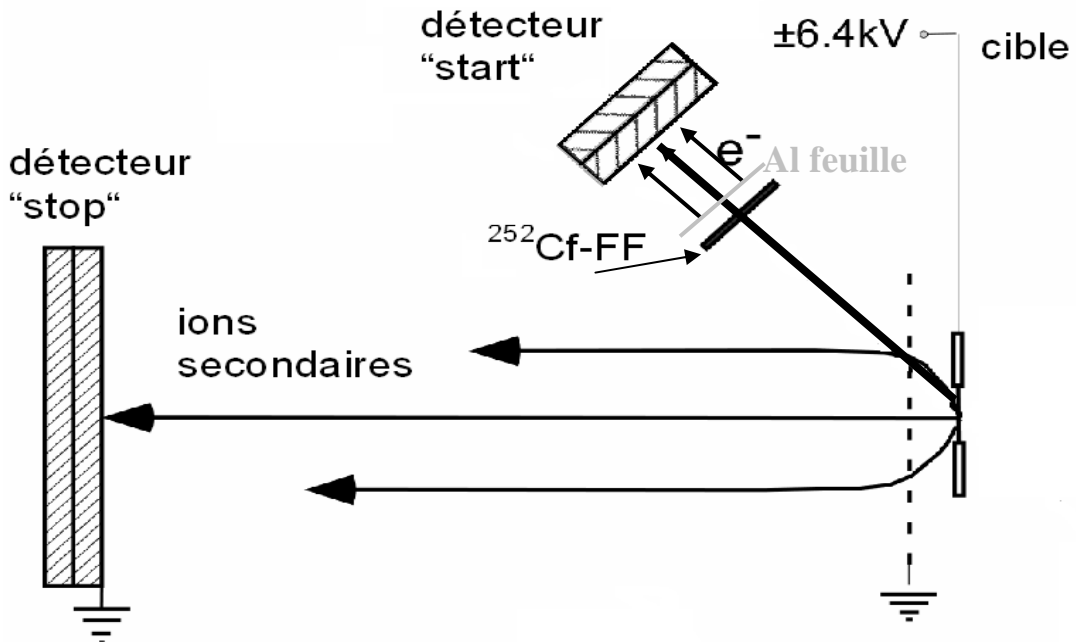


Figure III-17 : Schéma du détecteur TOF a) le dispositif de TOF utilisé sur l'accélérateur de Van de Graaff et b) le dispositif de PDMS.

D- Analyse des données : principe et étalonnage

I. Introduction

Comme nous l'avons vu dans la première partie de ce chapitre, l'originalité du dispositif AODO est de mesurer à la fois le temps de vol (TOF) et les positions en X et en Y pour chaque ion émis. A partir du TOF et de la partie imagerie XY-TOF, il est possible de :

- 1) identifier les ions émis (spectre en masse) ;
- 2) déterminer les composantes du vecteur vitesse initial v_0 ;
- 3) en déduire les distributions en énergie $N(E)$ et en angle $N(\theta)$ pour chaque ion émis ;

Le calcul des composantes du vecteur vitesse v_0 nécessite l'étalonnage des systèmes en temps de vol TOF et en positions XY. Pour cela, nous utilisons la “ligne de gaz” correspondant à l'ionisation d'un gaz injecté (He, Ne, Ar...) par le projectile [Jaloway 2004, Jaloway 2002]. La “ligne de gaz” permet aussi la vérification des paramètres δ , d_1 , d_2 , U_1 et U_2 .

II. Etude de la ligne de gaz

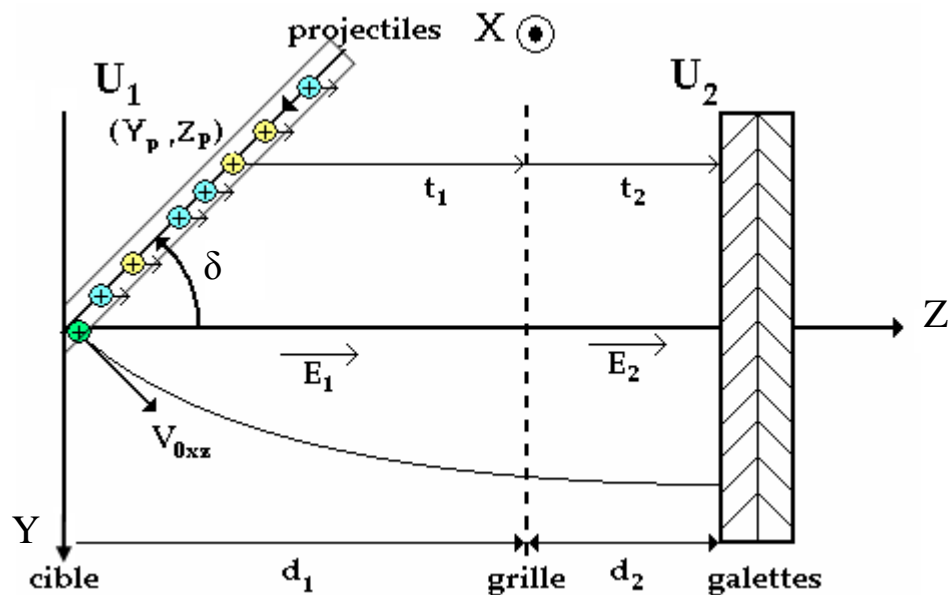


Figure III-18 : Schéma de l'ionisation du gaz par le faisceau des projectiles.

De l'hélium (He) est introduit dans l'enceinte de l'expérience à l'aide d'une microfuite (environ 2×10^{-6} mbar). Les atomes d'hélium se trouvant sur la trajectoire du faisceau d'ions peuvent être ionisés. Les ions ainsi créés ont une vitesse initiale négligeable [Grandin 1988] (vitesse d'agitation thermique).

Un atome d'He (de coordonnées $(0, Y_p, Z_p)$ dans le repère de la figure III-18) est ionisé à l'instant t_s avant l'arrivée du projectile sur la cible (de coordonnées $(0,0,0)$). La valeur de t_s est :

$$t_s = \frac{y_p}{\sin(\theta_p) v_p} \quad \text{avec } \theta_p \text{ l'angle d'incidence du projectile et } v_p \text{ sa vitesse}$$

Pour les ions SME, v_p est de l'ordre de 3×10^7 m/s. Ce temps est donc inférieur à 1 ns ($t_s < \frac{0.1}{0.5 \times 3 \times 10^7} = 0.7 \text{ ns} < 1 \text{ ns}$). Cet ion He^+ est soumis au champ uniforme E_1 pendant une durée t_1 , puis est soumis à un champ uniforme E_2 pendant une durée t_2 . Il est ensuite détecté par les galettes. Son temps de vol est donc :

$$TOF = t_1 + t_2 - t_s$$

En utilisant les relations de la dynamique, les valeurs de t_1 et t_2 sont :

$$t_1 = \frac{2(d_1 - Z_p)}{v_1} \quad \text{et} \quad t_2 = \frac{2d_2}{v_2 + v_1} \quad (\text{expliqué en détails dans l'annexe 1})$$

v_1 et v_2 correspondant respectivement aux vitesses de l'ion au niveau de la grille et à l'entrée des galettes. v_1 et v_2 sont égales à :

$$v_1 = \sqrt{\frac{2qU_1(d_1 - Z_p)}{md_1}} \quad \text{et} \quad v_2 = \sqrt{\frac{2qU_1}{md_1} + v_1^2}$$

Le TOF est donnée par (détaillé en annexe 1) :

$$TOF = \left(\frac{2md_1}{qU_1} |d_1 - \cot g(\theta_p) y_p| \right)^{1/2} + \frac{md_2}{qU_2} \left[\left(\frac{2qU_2}{md_1} |d_1 - y_p \cot g(\theta_p) y_p| \right)^{1/2} - \left(\frac{2qU_1}{md_1} |d_1 - \cot g(\theta_p) y_p| \right)^{1/2} \right] - \frac{y_p}{\sin(\theta_p) v_p} \quad (\text{III-1})$$

III. Etalonnage en position X et Y

III.a Détermination de l'origine en position X_0 et Y_0

L'utilisation des spectres représentant la position X et Y en fonction du temps de vol (TOF) permet de déterminer les coordonnées (X_0 , Y_0) d'un atome d'He ionisé au niveau de la surface de la cible. Les figures III-19a et b montrent des exemples de spectres X-TOF et Y-TOF, sur lesquels l'extrémité⁶ de la ligne de gaz d'He est bien visible. Ces points nous donnent les valeurs X_0 et Y_0 nécessaire pour convertir et étalonner l'image du détecteur (XY).

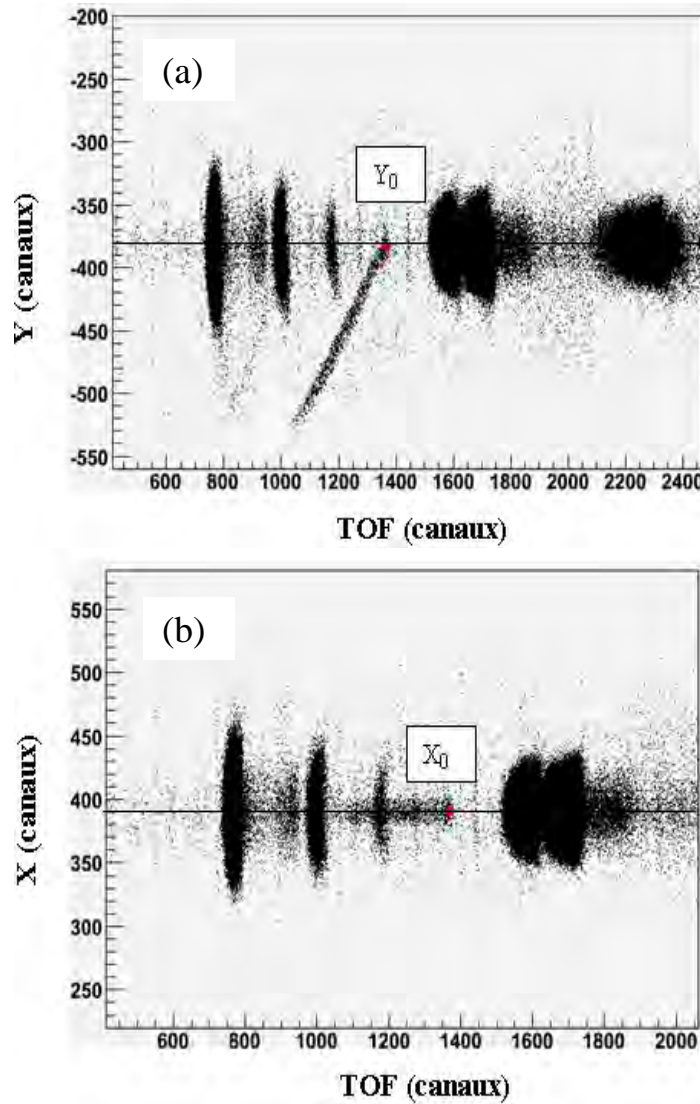


Figure III-19 : Spectres Y et X en fonction du TOF pour un système de collision Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF : l'extrémité de la ligne de gaz d'He avec la surface de la cible est indiquée par un point rouge.

⁶ L'extrémité de la ligne de gaz correspond au point d'impact du faisceau avec la surface de la cible.

III.b Etalonnage en mètre de “l’image du détecteur”

A partir des paramètres bruts X_1 , X_2 , Y_1 et Y_2 il est possible de calculer :

$$X = X_2 - X_1 \text{ et } Y = Y_2 - Y_1$$

Les positions suivant les axes X et Y sont déterminées à partir de la différence entre X et X_0 , d’une part et, Y et Y_0 d’autre part. Ces valeurs étant initialement en canaux, elles sont converties et étalonnées en mètre à partir des deux relations suivantes :

$$X(m) = \frac{d}{(X_{\max} - X_{\min})} \times (X - X_0)$$

et $Y(m) = \frac{d}{(Y_{\max} - Y_{\min})} \times (Y - Y_0)$ (III-2)

d représente le diamètre des galettes ($d = 0.086$ m). Les valeurs X_{\min} , X_{\max} , Y_{\min} et Y_{\max} sont obtenues par la largeur de l’image du détecteur (ou par le pic photon qui couvre toute la largeur du détecteur).

La figure III-20 montre donc l’image du détecteur étalonnée (en m) et centrée sur (0,0) à partir des équations III-2.

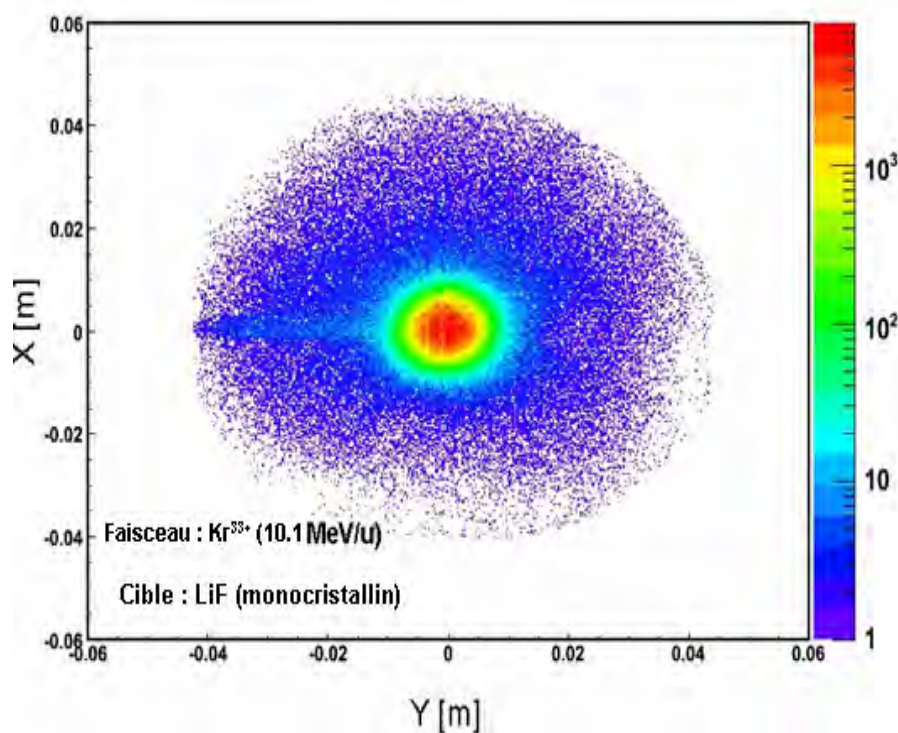


Figure III-20 : “Image du détecteur” étalonnée en mètre.

IV. Etalonnage en temps de vol et en masse :

Le spectre en temps de vol étant défini en canaux (C), il doit être converti et étalonné en temps. Chaque canal correspond à 0.5 ns [Tarisien 2003]. Pour réaliser cet étalonnage, nous utilisons le pic photons et la “ligne de gaz” d’hélium (He). Le TOF des photons émis lors de la collision est de 0.35 ns. Il est donc considéré comme négligeable par rapport au TOF des ions tels que Li^+ . Le pic photon est donc pris comme origine t_0 du spectre. Le TOF étalonné et converti en seconde (s) est donc donné par l’équation suivante :

$$TOF(s) = (TOF - a) \times 0.5 \times 10^{-9} s \quad (\text{III-3})$$

Avec a la position du pic photon (en canaux).

La “ligne de gaz” d’hélium permet, d’une part, de déterminer le point d’impact du faisceau avec la surface (X_0 , Y_0 , et TOF_0 d’He), et d’autre part, de valider les paramètres U_1 , U_2 , d_1 , d_2 et δ à l’aide de son “ajustement” théorique (éq. III-1) et accessoirement de calculer le TOF_0 de $m = 4u$ avec $v_0 = 0$.

IV.a Détermination de l’origine en temps TOF_0 ($v_{0z} = 0$)

La figure III-21 montre l’étalonnage sur le spectre Y-TOF avec un “ajustement” (la ligne bleue) théorique (éq. III-1) de la ligne de gaz d’hélium. Cela permet de valider les paramètres d_1 , d_2 et δ (U_1 et U_2 sont réglées et vérifiées manuellement). L’extrémité de la ligne de gaz est bien visible. Elle correspond au point d’impact du faisceau au niveau de la surface. Ce point nous permettra de déterminer la valeur de TOF_0 qui correspond au temps de vol d’une masse $4u$ (He^+) ayant une vitesse initiale négligeable ($v_0 = 0$).

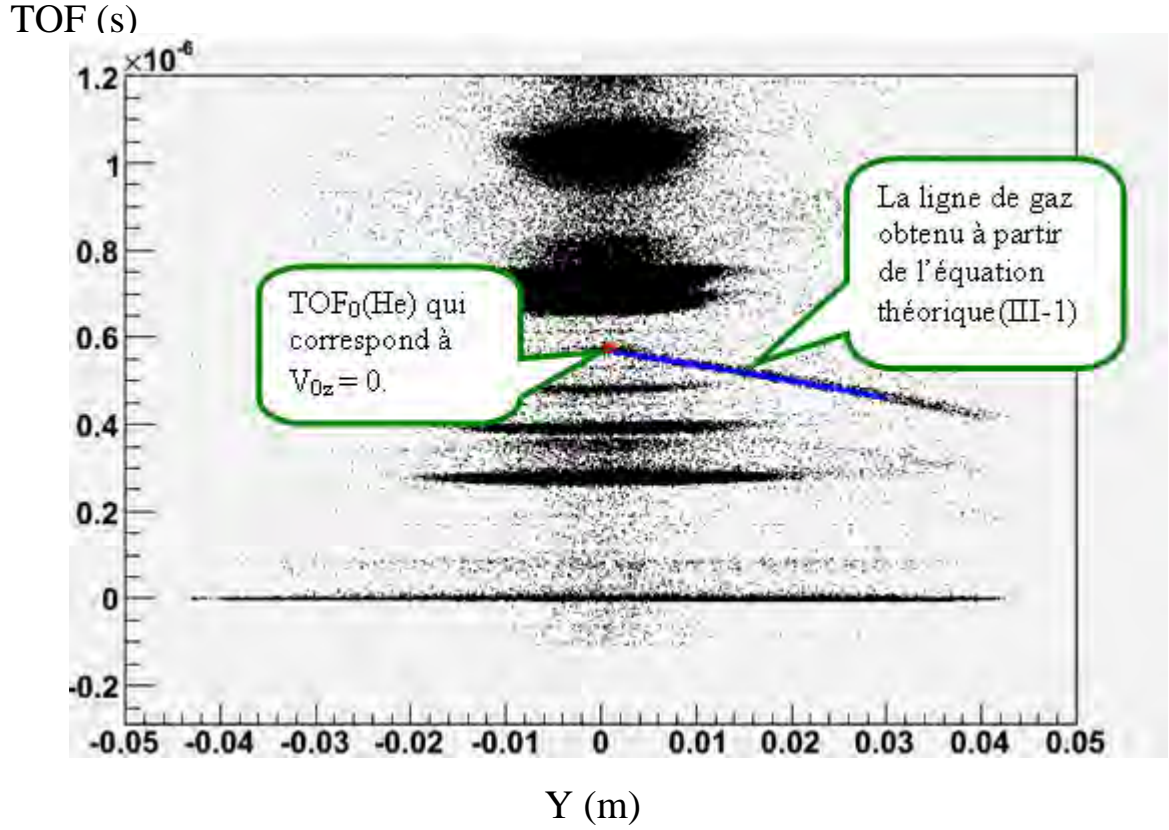


Figure III-21 : Spectre étalonné en temps de vol et en position suivant l'axe Y pour le système de collision Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF : “ajustement” théorique de la ligne de gaz équation III-1 (ligne bleue).

Théoriquement la valeur de TOF_0 est donnée par l'équation (III-5, §V). En mettant $v_{0z} = 0$ dans cette équation, nous obtenons :

$$TOF_0(v_{0z} = 0) = \sqrt{\frac{m}{q}} \left(d_1 \sqrt{\frac{2}{U_1}} + \frac{d_1}{U_2} \sqrt{2U_2 + 2U_1} - \frac{d_1}{U_2} \sqrt{2U_1} \right) = \alpha \sqrt{\frac{m}{q}} \quad (\text{III-4})$$

$$\text{Avec } \alpha = d_1 \sqrt{\frac{2}{U_1}} + \frac{d_1}{U_2} \sqrt{2U_2 + 2U_1} - \frac{d_1}{U_2} \sqrt{2U_1}$$

A partir des résultats des mesures précédentes (figure III-21), nous avons déterminé expérimentalement et théoriquement la valeur du TOF_0 pour l'hélium ($m = 4u$). D'après l'équation III-4, nous pouvons déterminer la valeur correcte de la constante α et donc le TOF_0 pour chaque ion.

Selon l'équation III-3 et la valeur de α , il est possible de déterminer le spectre en masse des ions pulvérisés par la relation suivante : $m = \frac{q}{\alpha} \times TOF^2$.

Une fois l'étalonnage réalisé, nous pouvons identifier les bons événements pour chaque ion (annexe 3, figure 3) afin de calculer leur vecteur vitesse (paragraphe V).

V. Calcul des composantes du vecteur vitesse

Les ions secondaires sont pulvérisés avec une vitesse \vec{v}_0 dont les composantes sont v_{0x} , v_{0y} et v_{0z} . L'accélération des ions est suivant l'axe Z, les relations entre les composantes radiales (en X et en Y) sont tout simplement déduites à partir de $d = v \times t$, d'où :

$$X = v_{0x} \times TOF \quad \text{et} \quad Y = v_{0y} \times TOF$$

La détermination de la composante longitudinale (v_{0z}) est plus complexe ($TOF=f(v_{0z})$). La formule du TOF (détaillé en annexe 2) est :

$$TOF = t_1 + t_2$$

Avec t_1 le temps de vol entre la surface et la grille et t_2 celui entre la grille et les galettes (figure III-22). Les expressions de ces temps sont déterminées à l'aide des relations de la dynamique : le temps qu'un ion met pour traverser la première zone t_1 (entre la cible et la grille) et la deuxième zone t_2 (entre la grille et les galettes) sont donnés par :

$$\begin{cases} t_1 = \frac{md_1}{qU_1} \left(\sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - v_{0z} \right) \\ t_2 = \frac{md_2}{qU_2} \left(\sqrt{\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \right) \end{cases} \quad (\text{voir annexe 2})$$

La relation entre le TOF et la vitesse longitudinale est :

$$TOF = \frac{md_1}{qU_1} \left(\sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - v_{0z} \right) + \frac{md_2}{qU_2} \left(\sqrt{\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \right) \quad (\text{III-5})$$

Cette équation est univoque. Elle n'a pas de solution analytique simple. Il faut donc créer un programme informatique qui donnera la valeur approchée à l'aide d'une itération mathématique (voir annexe 3).

Pour un ion secondaire de masse m , la vitesse v_0 est donc donnée par :

$$v_0 = \left| \sqrt{v_{0x}^2 + v_{0y}^2 + v_{0z}^2} \right|$$

Son énergie cinétique E , $E = \frac{1}{2}mv_0^2$.

Si l'on tient compte tous les ions de masse m , il est possible de déterminer la distribution en énergie $N(E)$.

La même démarche peut être réalisée pour les distributions angulaire $N(\theta)$ sachant que pour chaque espèce ionique θ est égale à : $\theta = \tan\left(\frac{v_t}{v_{0z}}\right)$, où v_t est la vitesse transversale $v_t = \sqrt{v_{0x}^2 + v_{0y}^2}$. Les distributions en énergie et en angle ont été calculées événement par événement ("event" par "event").

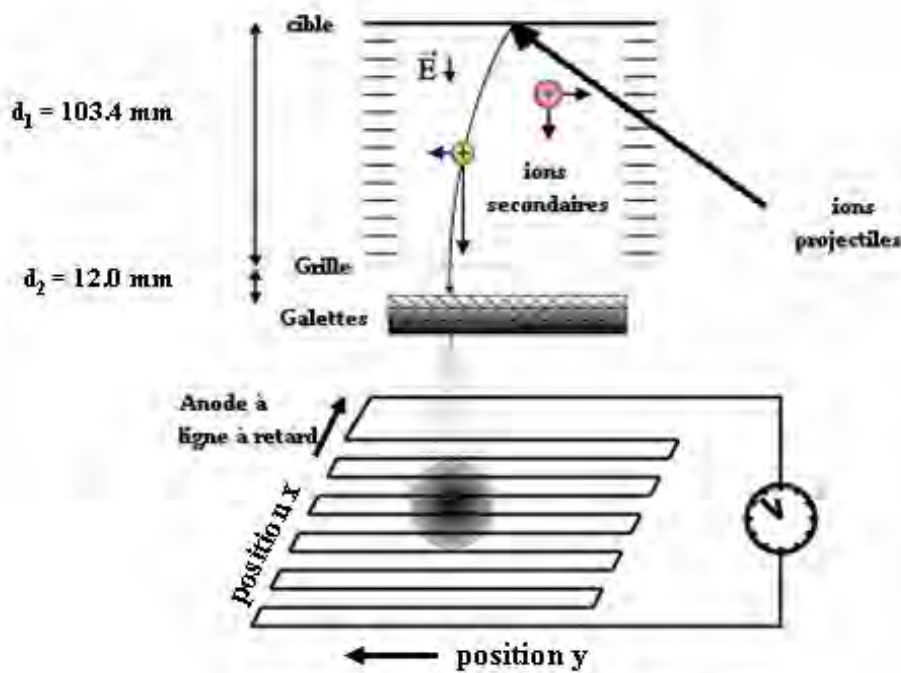


Figure III-22 : Schéma du détecteur XY-TOF.

VI. Incertitudes des paramètres X, Y et TOF

Les six signaux bruts X_1 , X_2 , Y_1 , Y_2 , MCPPROJ et MCPSIG sont mesurés via le TDC, avec une certaine précision. Les grandeurs X, Y et TOF dépendent de ces six paramètres. Il existe donc une incertitude sur ces trois grandeurs.

La précision des mesures des six paramètres dépend essentiellement des réglages de l'électronique de détection, en particulier des CFD, et de la structure temporelle du faisceau incident. Un paquet d'ions incident d'une durée de 1 ns est délivré environ toutes les 100 ns. Cette structure temporelle explique déjà une incertitude de 1 ns à laquelle vient se rajouter l'incertitude due à la précision de réglage des CFD. Le signal HF de l'accélérateur n'a pas été utilisé en coïncidence avec le signal "star".

Le temps de vol est déterminé de la manière suivante : $TOF = MCPPROJ - MCPSIG$. Si le temps de vol du photon TOF(photon) est parfait, sa largeur $\Delta\tau$ doit être égale à 1 ns. Si cette largeur est supérieure à 1 ns cela signifie que cette incertitude supérieure est due aux CFD.

La largeur du pic photon correspond donc à la somme des incertitudes sur le "start" et les "stop" : c'est donc une bonne estimation sur la valeur de l'incertitude. Le spectre en temps de vol étant défini en canaux (C), il doit être étalonné en temps. Chaque canal correspond à 0.5 ns (précis) [Tarisien 2003].

La même démarche peut être réalisée pour les positions X et Y. Les X et Y bruts sont calculées à partir des paramètres bruts X_1 , X_2 , Y_1 et Y_2 :

$$X = X_2 - X_1 \text{ et } Y = Y_2 - Y_1$$

Les grandeurs X_1 , X_2 , Y_1 et Y_2 correspondent au temps de propagation entre le point de collisions des électrons provenant des galettes et chaque extrémité de chaque fil. Il existe alors une incertitude sur ces quatre signaux. Les incertitudes sur X_1 , X_2 , Y_1 et Y_2 provenant principalement des réglages des CFD. Elles sont de l'ordre de 4 canaux soient 2 ns.

X_1 et X_2 ne sont pas indépendants. La somme de X_1 et X_2 est une constante (sumX). Elle correspondant au temps de propagation de l'impulsion sur toute la longueur du fil de l'anode. Cette constante est bien connue. L'incertitude sur cette grandeur est donc faible $\Delta(\text{sumX}) \approx 0$.

Sachant que :

$$X = X_1 - X_2 \text{ et } X_1 + X_2 = \text{sum}X$$

$$\rightarrow X = \text{sum}X - 2X_1 \text{ et } \Delta X = 2 * \Delta X_1 \text{ (ou } \Delta X_2)$$

Et comme $\Delta X_2 = \Delta X_1$, on peut en déduire que $\Delta X = \Delta X_2 + \Delta X_1$ (la même démarche peut être réalisée pour la position $\Delta Y = \Delta Y_2 + \Delta Y_1$).

Les valeurs de X et Y bruts sont converties et étalonnées (en m) par rapport à l'origine (X_0, Y_0) (point d'impact du faisceau avec la surface de la cible). Il existe donc des incertitudes des mesures sur ces deux valeurs. La largeur de la ligne de gaz, qui est donnée par la largeur du faisceau, permet de déterminer ces incertitudes.

Nous allons maintenant présenter un exemple de la détermination des incertitudes ΔTOF , ΔX et ΔY . La figure III-23 montre le pic photon pour le système de collision Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF (monocristallin). La largeur du pic photon dans ce cas est d'environ 6 canaux. L'incertitude sur le temps de vol ΔTOF est donc $\Delta\tau \approx 5$ canaux, ce qui est équivalent à 2.5 ns.

Coups (unités arbitraires)

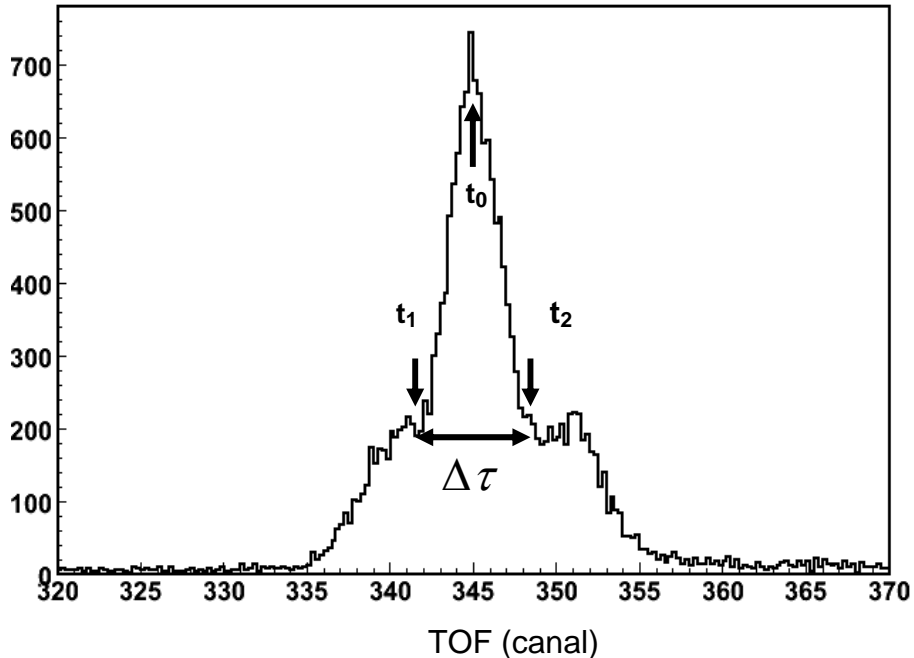


Figure III-23 : Pic photon pour le système de collision Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF.

Dans l'exemple présenté sur le spectre X-TOF (figure III-19), la largeur de la ligne de gaz est d'environ 12 canaux. L'incertitude de mesure X_0 et Y_0 est donc égale à :

$$\Delta X_0 \approx 6 \text{ canaux} \quad \text{et} \quad \Delta Y_0 \approx 6 \text{ canaux}$$

Les incertitudes totales sur X et Y , converties et étalonnées en mètre, correspondent donc à la somme des incertitudes provenant des réglages des CFD et de la largeur de la ligne de gaz (largeur du faisceau) : c'est donc $\Delta X \approx 14$ canaux et $\Delta Y \approx 14$ canaux (≈ 3 mm).

Nous allons maintenant montrer un exemple de distribution d'énergie du ${}^7\text{Li}^+$, en prenant compte toutes les incertitudes (ΔTOF , ΔX et ΔY). La figure III-24(a-c) présente donc la distribution en énergie du ${}^7\text{Li}^+$ émis de LiF par Kr^{33+} (MeV/u) pour un étalonnage par rapport à : courbe (24a) ($t_1 = t_0 - 2.5$ canaux, $X_1 = X - 8$ canaux, $Y_1 = Y - 8$ canaux), courbe (24b) (t_0, X, Y) et courbe (24c) ($t_2 = t_0 + 2.5$ canaux, $X_2 = X + 8$ canaux, $Y_2 = Y + 8$ canaux).

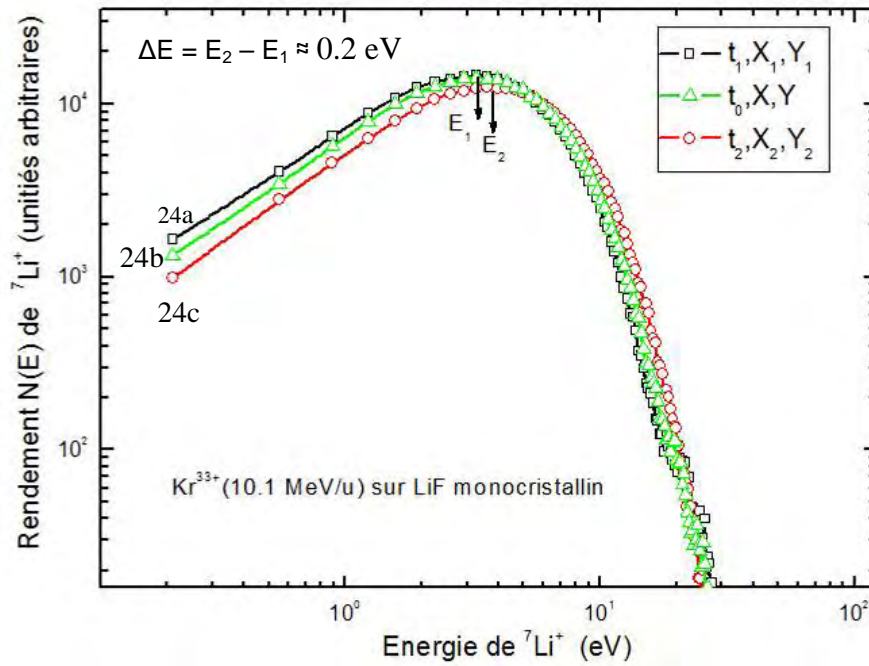


Figure III-24 : Distribution en énergie du ${}^7\text{Li}^+$ émis de LiF par Kr^{33+} (10.1 MeV/u).

Le maximum de la distribution en énergie du ${}^7\text{Li}^+$ change d' $E_1 \approx 3.2$ eV à $E_2 \approx 3.4$ eV, de t_1 à t_2 . L'incertitude ΔE est d'environ 0.2 eV. L'erreur par rapport à la distribution de t_0 est de ≈ 7 %. Elle est maximum pour $E_0 \approx 3.3$ eV.

Chapitre 4 : Résultats sur les distributions en masse

Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats expérimentaux obtenus :

(1) Au département de physique de l'université PUC (Rio de Janeiro) pour deux types de projectiles :

- i) Un faisceau d'ions N^{q+} (≈ 0.1 MeV/u) généré par l'accélérateur Van de Graaff (VDG).
- ii) Des Fragments de Fissions (FF) provenant d'une source radioactive de ^{252}Cf . Ces Fragments de Fissions ont une masse moyenne de $\langle M \rangle \approx 125$ u et une énergie moyenne de $\langle E \rangle \approx 65$ MeV.

Pour les deux types d'ions projectiles (N^{q+} et FF) la technique expérimentale utilisée est la spectrométrie de masse des ions secondaires émis sous impact d'ion. Elle a été inventée par R.D. Macfarlane [Macfarlane 1979].

(2) Au GANIL (Caen) par des ions projectiles lourds ($16 \leq Z_1 \leq 92$).

Dans la première partie, nous étudions l'évolution de la production des ions secondaires à partir de différentes cibles de LiF (mono et poly-cristallin) en fonction des conditions de vide. Nous présentons en particulier les résultats obtenus avec des Fragments de Fissions (dans des conditions de vide standard) pour différents types de cibles (monocristalline, polycristalline, différentes épaisseurs...). Puis nous comparons deux spectres de masse obtenus au GANIL pour deux expériences différentes : 1) avec une cible de LiF (monocristallin) non préparée (condition de vide standard) et 2) avec une cible de LiF (monocristallin) préparée (UHV, AODO).

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous présentons les distributions de masse obtenues en fonction du pouvoir d'arrêt électronique pour cinq projectiles différents sur la ligne SME-GANIL (ions positifs). Puis nous comparons deux spectres de masse pour des ions positifs et négatifs obtenus à partir d'une cible LiF polycristallin irradiée avec des FF.

Dans la troisième partie, nous étudions la multiplicité des ions secondaires émis d'une cible de LiF monocristallin par différents projectiles.

IV. Distribution en Masse

Le tableau IV-1 résume les principaux paramètres des projectiles qui ont été utilisés à Rio et à Caen : le type d'ions projectiles, leur charge (charge d'équilibre), leur énergie, leur pouvoir d'arrêt électronique dans le LiF et l'angle d'incidence δ . Il est à noter que le flux initial des faisceaux est égal à 10^3 particules/cm². À la fin des expériences, la fluence totale (le nombre total des projectiles accumulés sur la cible par unité de surface) est de l'ordre de 10^7 particules/cm².

1)

Projectiles	Energie (MeV/u)	Pouvoir d'arrêt électronique (keV/nm)	Angle d'incidence δ
$^{14}\text{N}^{2+}$	0.107	1.0	45°
FF- ^{252}Cf	$\langle E \rangle \approx 0.52$	$\langle S_e \rangle \approx 11$	45° (PDMS et VDG)

a) Caractéristiques des ions projectiles utilisés pour les expériences réalisées sur l'accélérateur VDG et sur le dispositif de type PDMS (Rio de Janeiro).

2)

Projectiles	Energie (MeV/u)	Pouvoir d'arrêt électronique (keV/nm)	Angle d'incidence δ
$^{36}\text{S}^{15+}$	11.4	1.8	35° et 62°
$^{40}\text{Ca}^{18+}$	7.6	3.6	35°, 45° et 62°
$^{58}\text{Ni}^{24+}$	10.9	5.3	35° et 62°
$^{56}\text{Fe}^{22+}$	4.8	6.8	35°, 45° et 62°
$^{73}\text{Ge}^{28+}$	9.12	7.1	35°
$^{78}\text{Kr}^{33+}$	10.1	8.3	35°, 45° et 62°
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	7.7	17.2	35° et 62°
$^{207}\text{Pb}^{53+}$	4.4	27.5	35° et 62°
$^{238}\text{U}^{55+}$	3.7	32.5	35° et 62°

b) Caractéristiques des ions projectiles utilisés sur la SME du GANIL (Caen).

Tableau IV-1 : Caractéristiques des ions projectiles utilisés.

IV.1 Expériences réalisées avec des Fragments de Fissions (irradiation à Rio)

Dans ce paragraphe nous allons présenter les résultats obtenus avec le dispositif de type PDMS dans des conditions de vide standard $p \approx 10^{-6}$ mbar.

Tout d'abord, nous allons comparer les spectres de masse d'ions secondaires émis à partir de deux cibles différentes :

- 1) Une cible de LiF polycristallin évaporé et déposé sur un substrat d'aluminium (épaisseur de LiF = 80 nm) (figure IV-1a).
- 2) Une cible de LiF monocristallin chauffé "ex-situ" à 60 °C pendant une heure (figure IV-1b). Les deux spectres ont été réalisés avec le même nombre de projectiles. Les deux cibles ont été préparées "ex-situ".

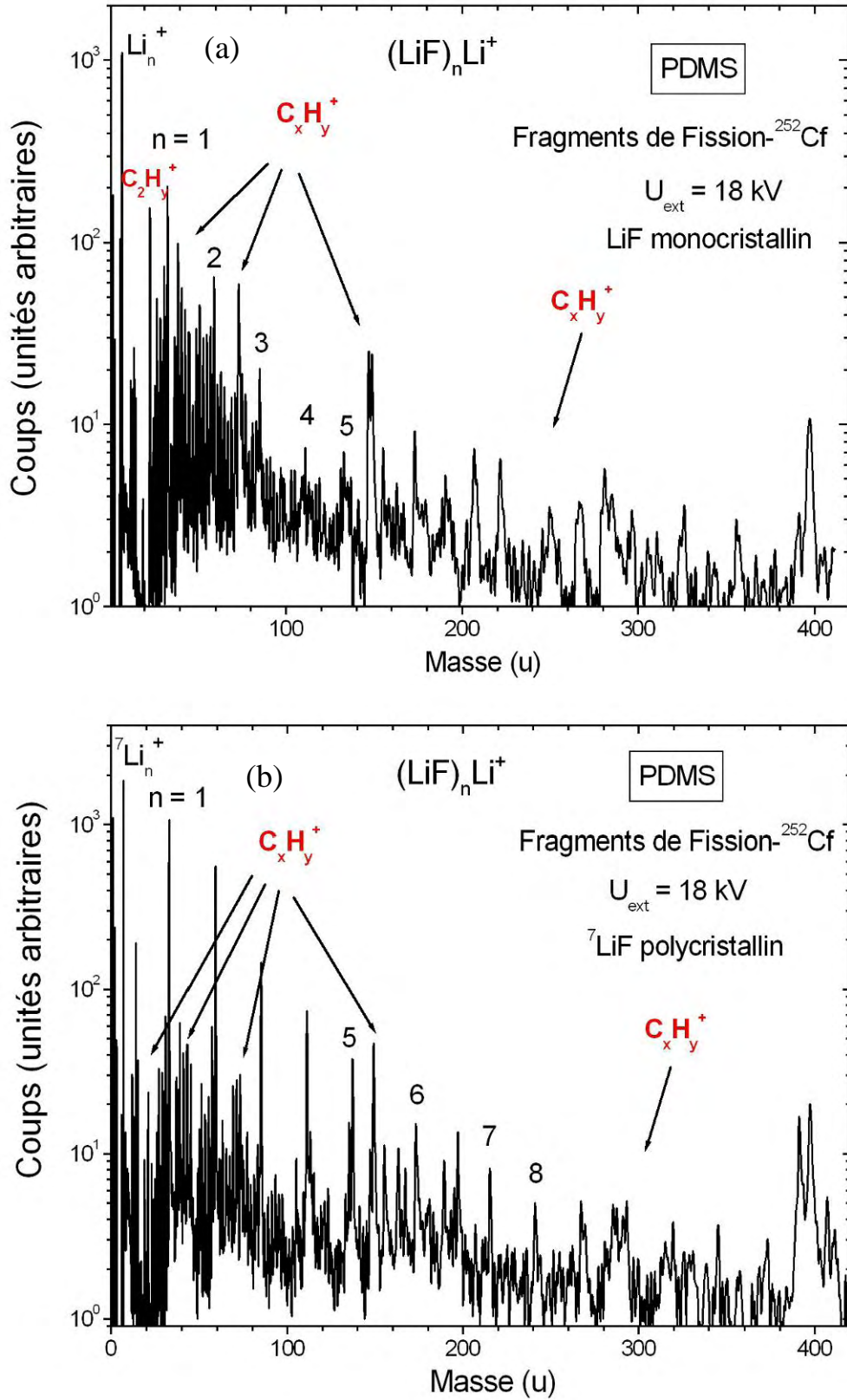


Figure IV-1 : Spectre de masse pour les systèmes de collision : (a) $\text{FF}-^{252}\text{Cf}$ ($\langle E \rangle \approx 65 \text{ MeV}$) sur LiF polycristallin : (b) $\text{FF}-^{252}\text{Cf}$ ($\langle E \rangle \approx 65 \text{ MeV}$) sur LiF monocristallin après chauffage dans des conditions de vide standard ($p \approx 10^{-6} \text{ mbar}$).

Nous remarquons qu'il y a plus d'émission d'agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ dans le cas du LiF polycristallin que dans le cas du LiF monocristallin (un ordre de grandeur supérieur). Dans le cas du LiF monocristallin nous observons des ions secondaires jusqu'au 5^{mère}, et jusqu'au 8^{mère} dans le cas du LiF polycristallin. Nous constatons aussi que les contaminations surfaciques de type C_xH_y^+ sont présentes sur les deux spectres.

Nous allons maintenant nous intéresser aux rendements totaux des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ pour les six différentes structures et différents traitements des cibles du LiF ci-dessous (figure IV-2).

1. LiF monocristallin (100) chauffé à 200 °C pendant une heure “ex-situ” (*cercles noirs*)
2. LiF polycristallin évaporé sur LiF monocristallin (100) chauffé à 60 °C pendant une heure “ex-situ” (*cercles pleins noirs*)
3. LiF polycristallin d'épaisseur 130 nm évaporé sur un substrat d'inox (*losanges bleus*)
4. LiF polycristallin d'épaisseur 14 nm évaporé sur un substrat d'inox (*carrés bleus*)
5. LiF polycristallin d'épaisseur 80 nm évaporé sur un substrat d'aluminium (*losanges rouges*)
6. LiF polycristallin d'épaisseur 14 nm évaporé sur un substrat d'aluminium (*carrés bleus*)

La figure IV-2 montre l'évolution des rendements totaux des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l'agrégat pour les six expériences réalisées avec des FF.

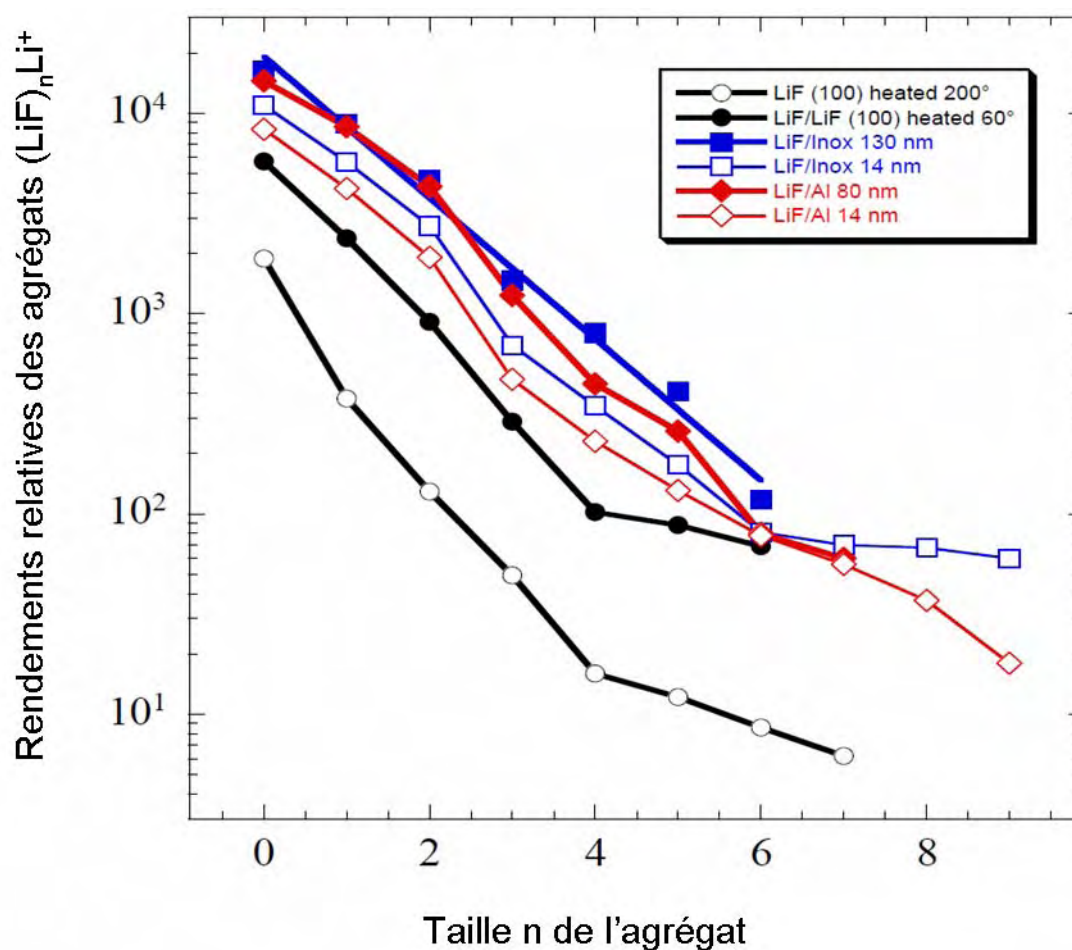


Figure IV-2 : Rendement total de la série $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l'agrégats pour les différentes cibles de LiF irradiées avec des FF.

Nous constatons que :

- 1- L'émission d'ions secondaires est nettement supérieure pour les cibles polycristallines par rapport aux cibles monocristallines (un ordre de grandeur supérieur).
- 2- Les rendements totaux de production des agrégats augmentent avec l'épaisseur de la couche de LiF évaporée. On peut donc en déduire qu'il existe une relation entre l'épaisseur de la couche et les rendements de production.
- 3- Dans le cas des cibles évaporées sur un substrat métallique, les rendements sont peu sensibles à la nature du substrat.

IV.2 Rendements de production des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de n : comparaison entre LiF polycristallin préparés “in-situ” et “ex-situ” (irradiation au GANIL)

Dans ce paragraphe, nous étudions l’influence sur l’émission des ions secondaires pour deux cibles de LiF polycristallin (≈ 100 nm), préparées “in-situ” pour la première et “ex-situ” pour la seconde.

La figure IV-3 montre les rendements de production des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l’agrégat pour les système collisionnels suivants :

1. Ge^{28+} (9.12 MeV/u) sur LiF polycristallin (100 nm) déposé sur un substrat de cuivre “in-situ”. Cette cible a été préparée dans des conditions d’ultra vide sur AODO.
2. Ni^{24+} (10.9 MeV/u) sur LiF polycristallin (100 nm) déposé sur un substrat d’aluminium “ex-situ”. Cette cible a été préparée, à Rio, de la même manière que celles présentées dans le paragraphe précédent avec un système de pompage correspondant à des conditions de vide standard.

Les deux expériences ont été réalisées avec le système ultra vide (AODO) sur la ligne de SME-GANIL. Il est aussi à noter que cette comparaison a été réalisée avec un nombre de projectiles comparable.

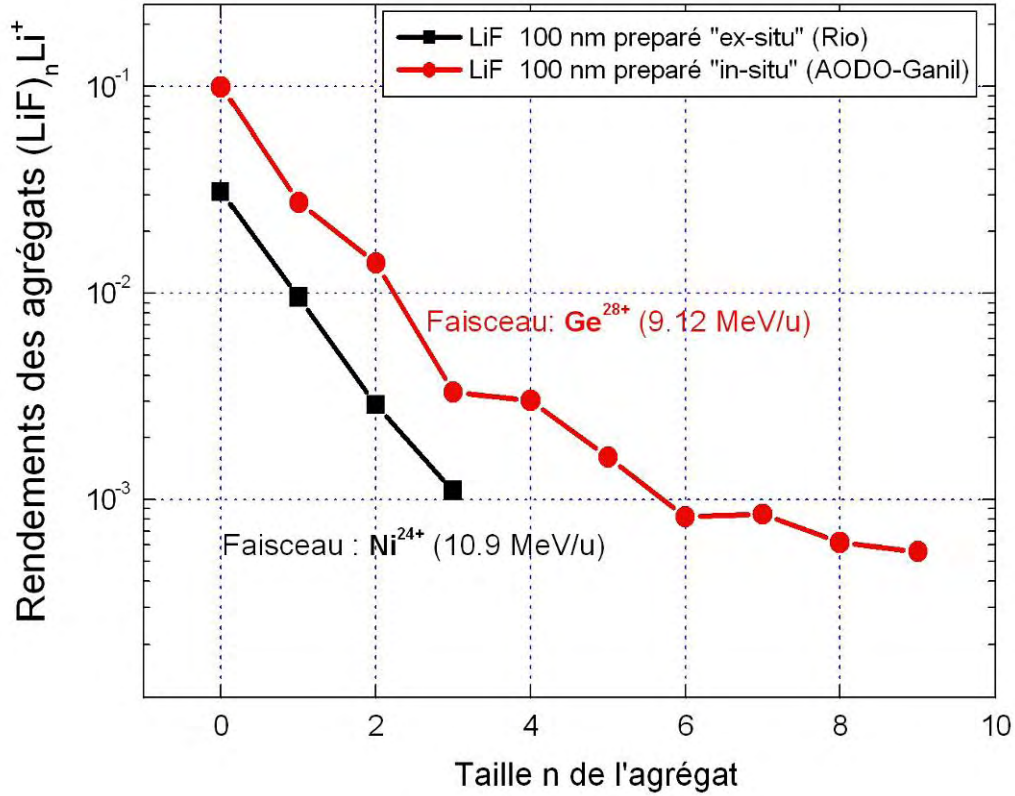


Figure IV-3: Rendement total de la série $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n des agrégats pour : une cible de LiF polycristallin préparée “in-situ” et irradiée par Ge^{28+} (9.12 MeV/u) (cercles) et une cible de LiF polycristallin préparée “ex-situ” irradiée par Ni^{24+} (10.9 MeV/u) (carrés).

Nous remarquons que dans le cas d’une cible de LiF polycristallin préparée “in-situ” irradiée par des ions Ge^{28+} , les agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ sont observables jusqu’à $n = 9$. Pour le LiF polycristallin préparé “ex-situ” (à Rio) irradié par des ions Ni^{24+} , nous observons les agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ jusqu’à $n = 3$. Ainsi, les gros agrégats ($n \geq 4$) ne sont pas observables. A n égal, la production d’agrégats est plus grande dans le cas de la cible polycristalline préparée “in-situ” (environ un ordre de grandeur supérieur). Ce facteur ne peut pas simplement être expliqué par le fait que le rendement total augmente en fonction de S_e^2 (chapitre 5, §V.4). Cela démontre clairement l’importance des études expérimentales avec des surfaces bien préparées “in-situ” et dans des conditions d’ultra vide.

IV.3 Effet de la préparation et du contrôle des surfaces : comparaison pour LiF monocristallin entre surface non traitée et préparée (irradiation au GANIL)

La figure IV-4(a) montre un spectre de masse d'ions secondaires, obtenu en irradiant une cible de LiF monocristallin (surface (100)) par un faisceau de Ca^{17+} (9.1 MeV/u) dans des conditions de vide standard (environ 7×10^{-7} mbar) [Lenoir 2007]. Bien que les deux isotopes de Li soient observés, les pics associés au sodium et aux hydrocarbures (contaminations de surface) dominent le spectre de masse. En conséquence, la série d'agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ n'est pas observable. La molécule Li_2^+ est cependant détectée car aucune contamination par les hydrocarbures ne se produisent dans cette gamme de masse. Avec le nouveau dispositif ultra vide (environ 2×10^{-9} mbar) et le nouveau protocole de préparation des cibles (clivage et étuvage), les pollutions surfaciques de type C_xH_y ne sont pas observées. Cela nous permet de détecter les deux séries d'agrégats Li_m^+ et $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ (figures IV-4a et b). Les séries d'agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ et Li_m^+ ($m = 2$ et 3) représentent 67 % des ions secondaires Li pulvérisés du LiF dans le cas du projectile Ca à 7.6 MeV/u (figure IV-6).

Un examen plus attentif du rapport $\text{Li}^+/\text{Li}_2^+$ pour les expériences réalisées en vide standard et en ultra vide montre que la contamination de surface conduit à une forte diminution du nombre d'éjecta Li_2^+ . Cette contamination a donc une influence directe sur le processus de pulvérisation. Cela démontre clairement l'importance et la pertinence des études expérimentales avec des surfaces bien préparées.

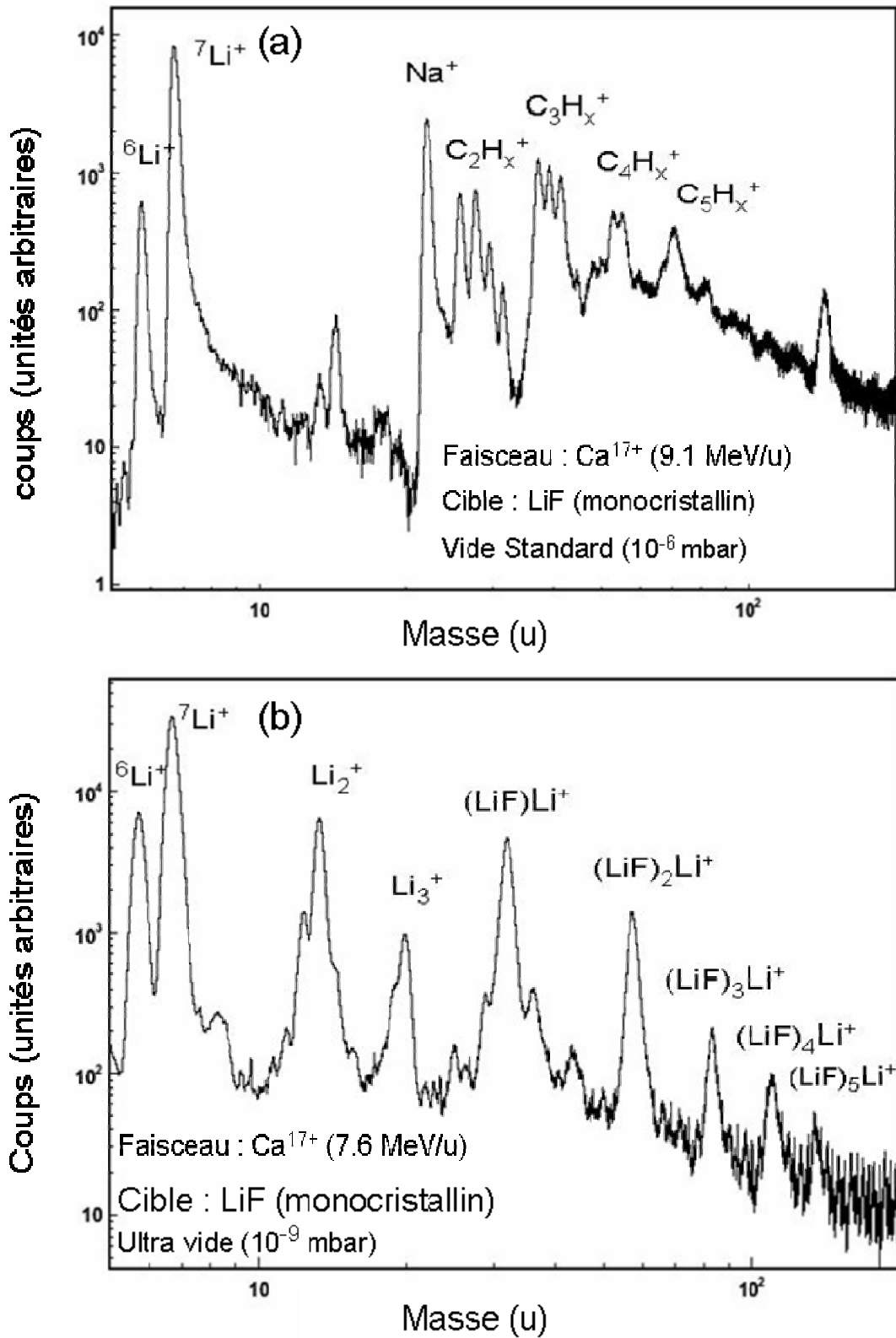


Figure IV-4 : Spectres de masse pour : (a) Ca^{17+} (9.1 MeV/u) (vide standard $p \approx 7 \times 10^{-7}$ mbar) ;
 (b) Ca^{18+} (7.6 MeV/u) sur LiF en ultra vide ($p \approx 2 \times 10^{-9}$ mbar).

IV.4 Expériences réalisées avec des ions lourds (SME-GANIL)

II.4.1. Ions secondaires positifs

Les figures IV-5(a-e) montrent les spectres de masse obtenus en irradiant une cible de LiF monocristallin avec 5 projectiles différents (Fe^{22+} (4.8 MeV/u), Kr^{33+} (10.1 MeV/u), Xe^{44+} (7.7 MeV/u), Pb^{53+} (4.4 MeV/u) et U^{55+} (3.7 MeV/u). Les paramètres concernant l'extraction des ions secondaires sont identiques pour les cinq expériences. La tension d'extraction appliquée sur la cible est égale à $U_1 = 3.0$ kV. L'angle d'incidence du faisceau est de $\delta = 35^\circ$ par rapport à la normale de la surface. Un zoom a été réalisé pour chaque spectre pour les masses comprises entre 0 et 70 u.

Ces expériences ont été réalisées avec le système d'ultra vide (AODO) sur la ligne de SME-GANIL. La pression de base dans la chambre était de $p \approx 2 \times 10^{-9}$ mbar.

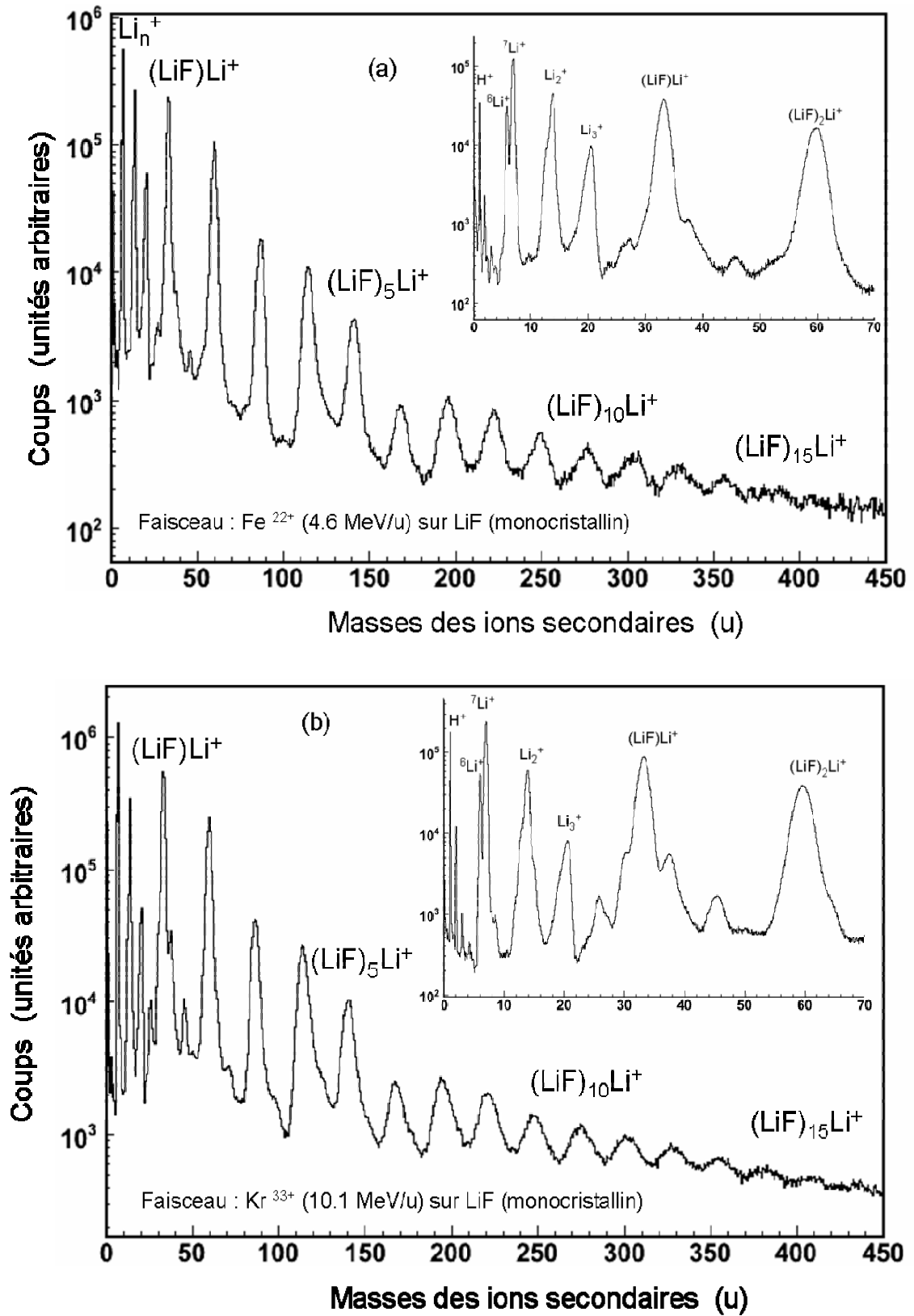


Figure IV-5 : Spectres de masse pour une cible de LiF monocrystallin avec différents projectiles : (a) en haut Fe^{23+} (4.8 MeV/u) ; (b) en bas Kr^{33+} (10.1 MeV/u).

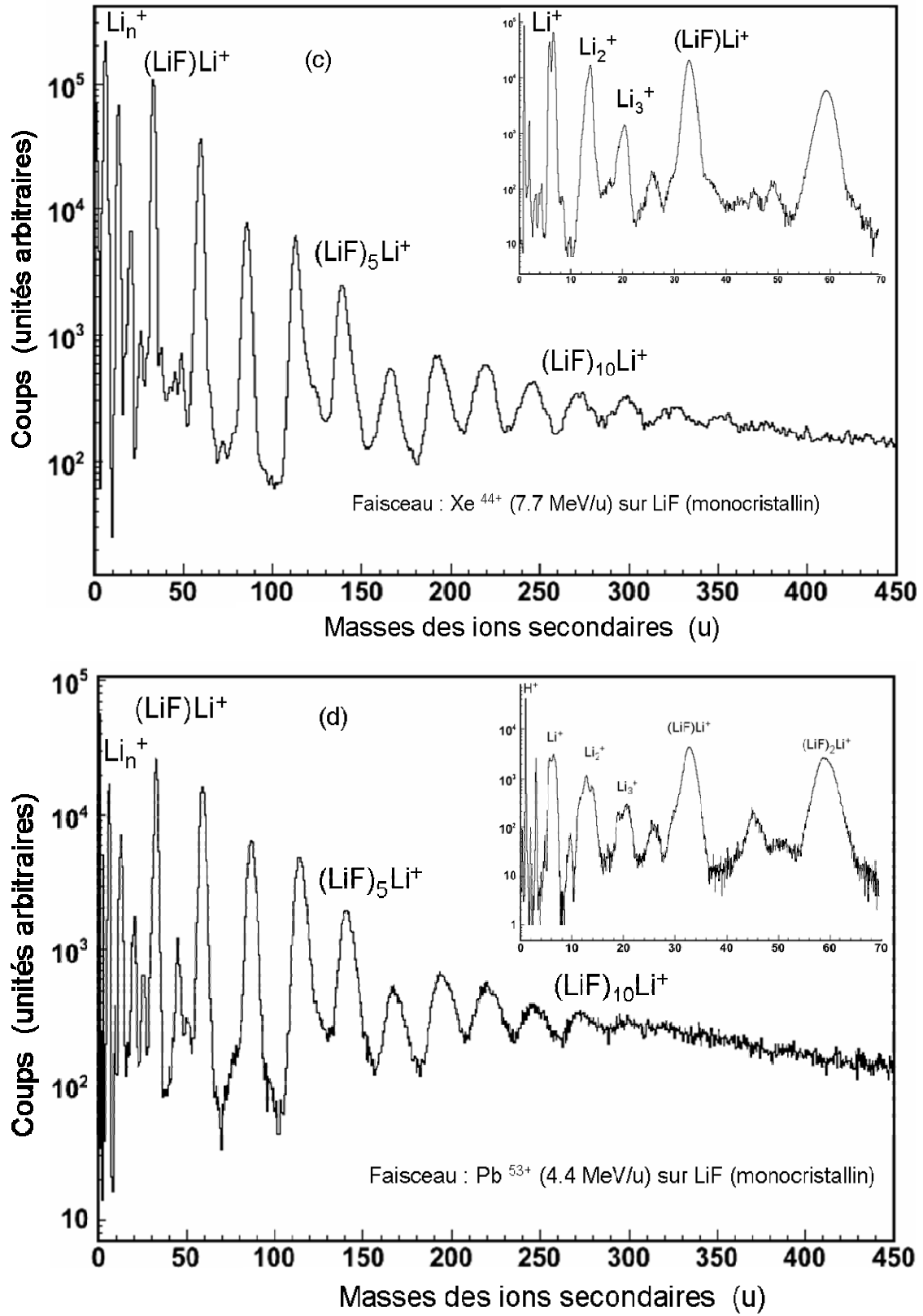


Figure IV-5 : Spectres de masse pour une cible de LiF monocrystallin avec différents projectiles : (c) en haut Xe^{44+} (7.7 MeV/u) ; (b) en bas Pb^{53+} (4.4 MeV/u).

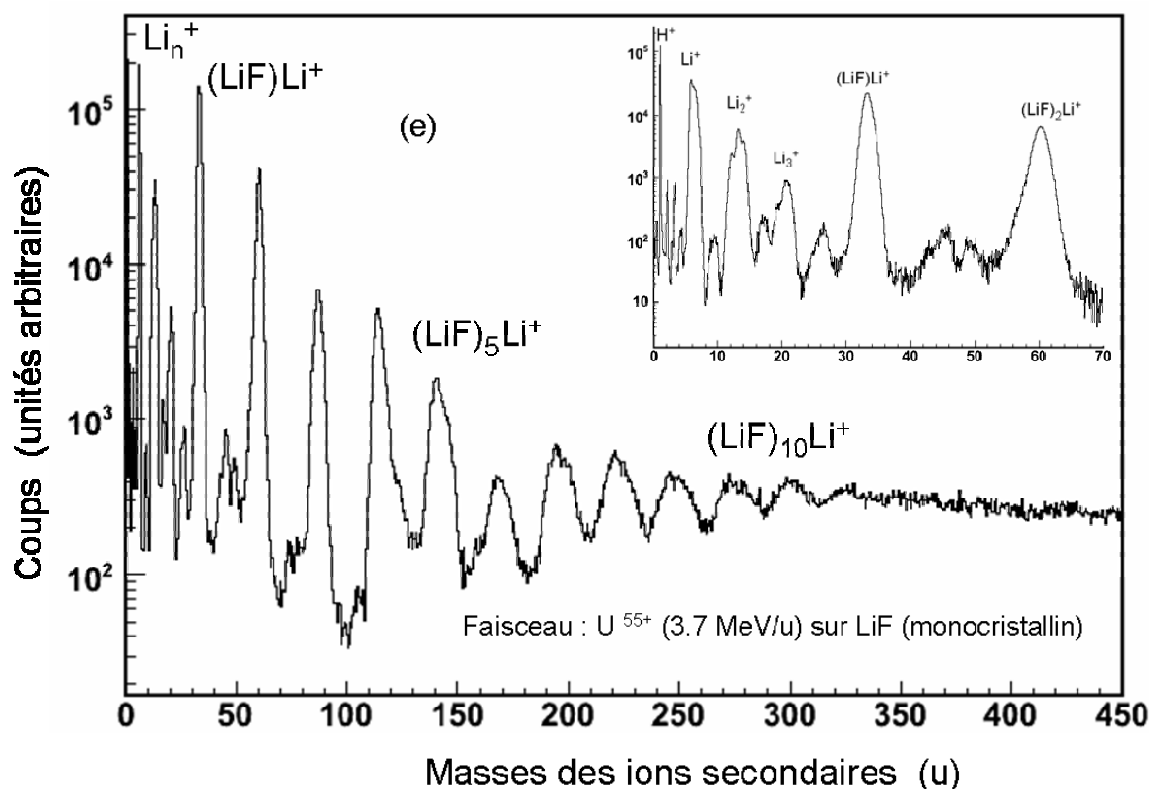


Figure IV-5 : (e) Spectre de masse pour une cible de LiF monocristallin avec un projectile U^{55+} (3.7 MeV/u).

Sur tous les spectres, nous observons principalement les pics des espèces suivantes :

- H^+ , H_2^+ , H_3^+
- ${}^6Li^+$, ${}^7Li^+$, et le groupe de Li_n^+ ($n = 2,3$)
- Le groupe de $(LiF)_nLi^+$ ($n = 1 \dots 15$)

L'hydrogène est omniprésent. Notre cible de LiF naturel contient deux isotopes du Li (${}^6Li^+$ et ${}^7Li^+$), dont l'isotope ${}^6Li^+$ représente environ 7 % du nombre total de Li.

Nous constatons que les pollutions surfaciques (C_xH_y) ne sont pas observables. Le rendement des agrégats diminue en fonction de leur taille n .

Pour tous les projectiles, il est à noter qu'il existe deux régimes différents pour la formation des agrégats de type $(LiF)_nLi^+$, la limite entre les deux régimes se situant au niveau de $n = 6$. Il est donc possible qu'il y ait différents mécanismes qui contribuent à l'émission de ces agrégats (voir chapitre 5 §V.1).

La figure IV-6 regroupe l'évolution des pourcentages de rendement, Y , des ions secondaires Li émis à partir de la surface de LiF sous forme du monomère Li^+ et des agrégats Li_m^+ et $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ pour chaque projectile utilisé⁷.

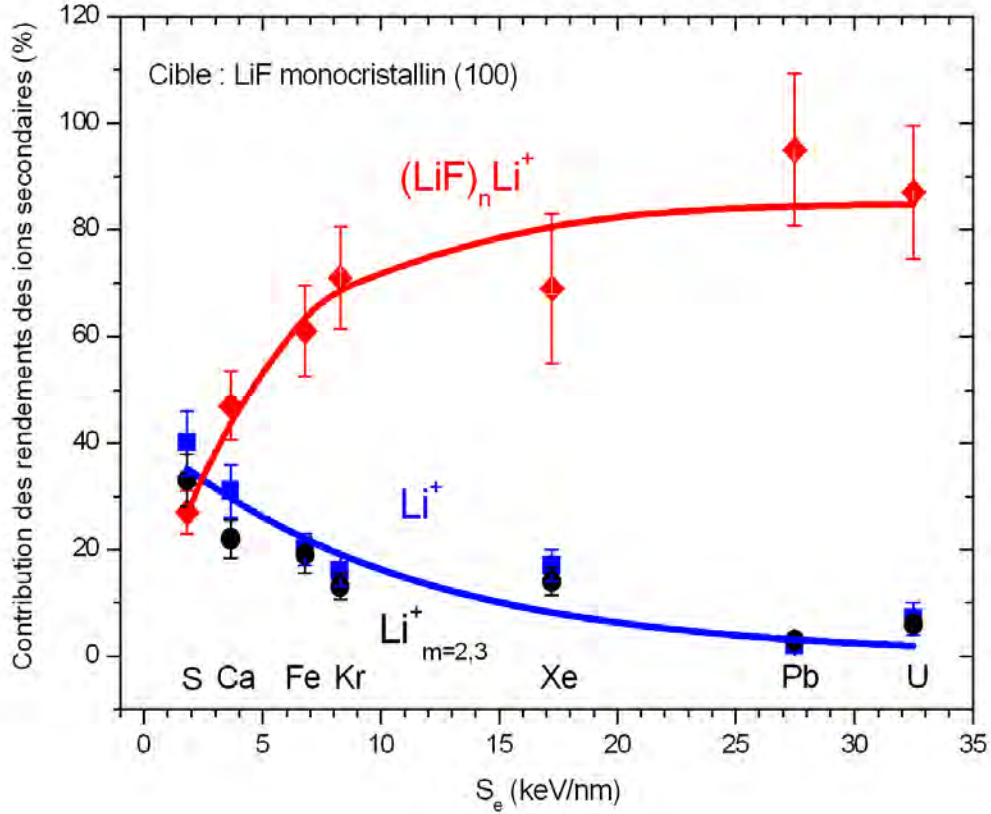


Figure IV-6 : Pourcentages des ions secondaires, monomère et agrégats, avec différents projectiles.

La comparaison monomères/agrégats aboutit aux conclusions suivantes :

- L'émission sous forme d'agrégats est prépondérante.
- La contribution des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ augmente en fonction de la perte d'énergie du projectile dans la cible.
- À l'exception cas du soufre, la contribution des agrégats de types $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ est prépondérante par rapport à celle des agrégats de type $(\text{Li})_m^+$.
- Les deux séries d'agrégats $(\text{Li})_m^+$ et $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ ont deux comportements distincts en fonction de la variation de la perte d'énergie : la proportion des

⁷ $Y(\text{Li}_m^+) = 2*Y(\text{Li}_2^+) + 3*Y(\text{Li}_3^+)$

$Y((\text{LiF})_n\text{Li}^+) = 2*Y((\text{LiF})\text{Li}^+) + 3*Y((\text{LiF})_2\text{Li}^+) + \dots + (n+1)*Y((\text{LiF})_n\text{Li}^+)$

$(\text{Li})_m^+$ diminue, tandis que celle des $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ augmente, lorsque la perte d'énergie augmente.

e) Le comportement de $(\text{Li})_m^+$ est similaire à celui du monomère Li^+ .

La prépondérance de l'émission sous forme d'agrégats a déjà été observée pour d'autres matériaux comme l' UO_2 [Schlutig 2001, Boudjadar 2003].

IV.5 Expériences VDG (Van de Graaff-Rio)

Les spectres de masse des ions secondaires positifs et négatifs émis par une cible de LiF polycristallin irradiée avec des FF sont présentés dans les figures IV-7a et 7b. La cible de LiF polycristallin est d'épaisseur 100 nm, évaporée sur un substrat de cuivre. Elle était préparée "ex-situ" (université de PUC avec un système dans des conditions d'ultra vide) [Hijazi 2011].

Un zoom a été réalisé pour chaque spectre pour les masses comprises entre 0 et 100 u.

IV.5.1. Ions secondaires positifs

Le spectre de masse des ions positifs émis de la cible de LiF polycristallin évaporé et enrichi en $^7\text{Li}^+$ est présenté sur la figure IV-7a. Nous observons les pics suivants :

- H^+ , H_2^+ , H_3^+
- $^6\text{Li}^+$, $^7\text{Li}^+$, et le groupe de Li_m^+ ($m = 2,3$)
- Le groupe de $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ ($n = 1 \dots 40$)
- Le groupe d'hydrocarbures C_xH_y^+ (27, 29, 31, 39 u etc...)

Les agrégats de type $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ représentent la contribution la plus importante de l'émission d'ions secondaires. Bien que la cible de LiF soit enrichie à 99 % en isotope ^7Li , le pic de l'isotope $^6\text{Li}^+$ est toujours visible sur notre spectre. La série de $^7\text{Li}_m^+$, avec $m = 2$ et 3, est aussi observable. Les pics des hydrocarbures C_xH_y^+ (27, 29, 31, 39, 41, 51 u etc...) sont dus aux contaminations surfaciques provenant du système de pompage.

IV.5.2. Ions secondaires négatifs

Le spectre de masse des ions négatifs émis de la cible de LiF polycristallin évaporé et enrichi en $^7\text{Li}^+$ est présenté sur la figure IV-7b. Nous observons les pics suivants :

- H^- et F^-
- Le groupe d'agrégats $(\text{LiF})_n\text{F}^-$ ($n = 1 \dots 20$)
- Le groupe d'hydrocarbures $\text{C}_n^-/\text{C}_n\text{H}^-$ (24/25, 36/37, 48/49, etc...)

Le spectre est principalement caractérisé par la contribution dominée par la série d'agrégats de type $(\text{LiF})_n\text{F}^-$. Des contaminations surfaciques provenant du système de pompage sont aussi observées ($\text{C}_n^-/\text{C}_n\text{H}^-$ (24/ 25, 36/ 37, 48/ 49 u etc...)). Dans le cas des ions négatifs, la contribution des pollutions surfaciques est de l'ordre de grandeur de celle des agrégats négatifs $(\text{LiF})_n\text{F}^-$.

Il est à noter que l'on observe l'existence de deux régimes de production des agrégats (autour de $n = 6$) pour les deux types de spectres (ions positifs et négatifs).

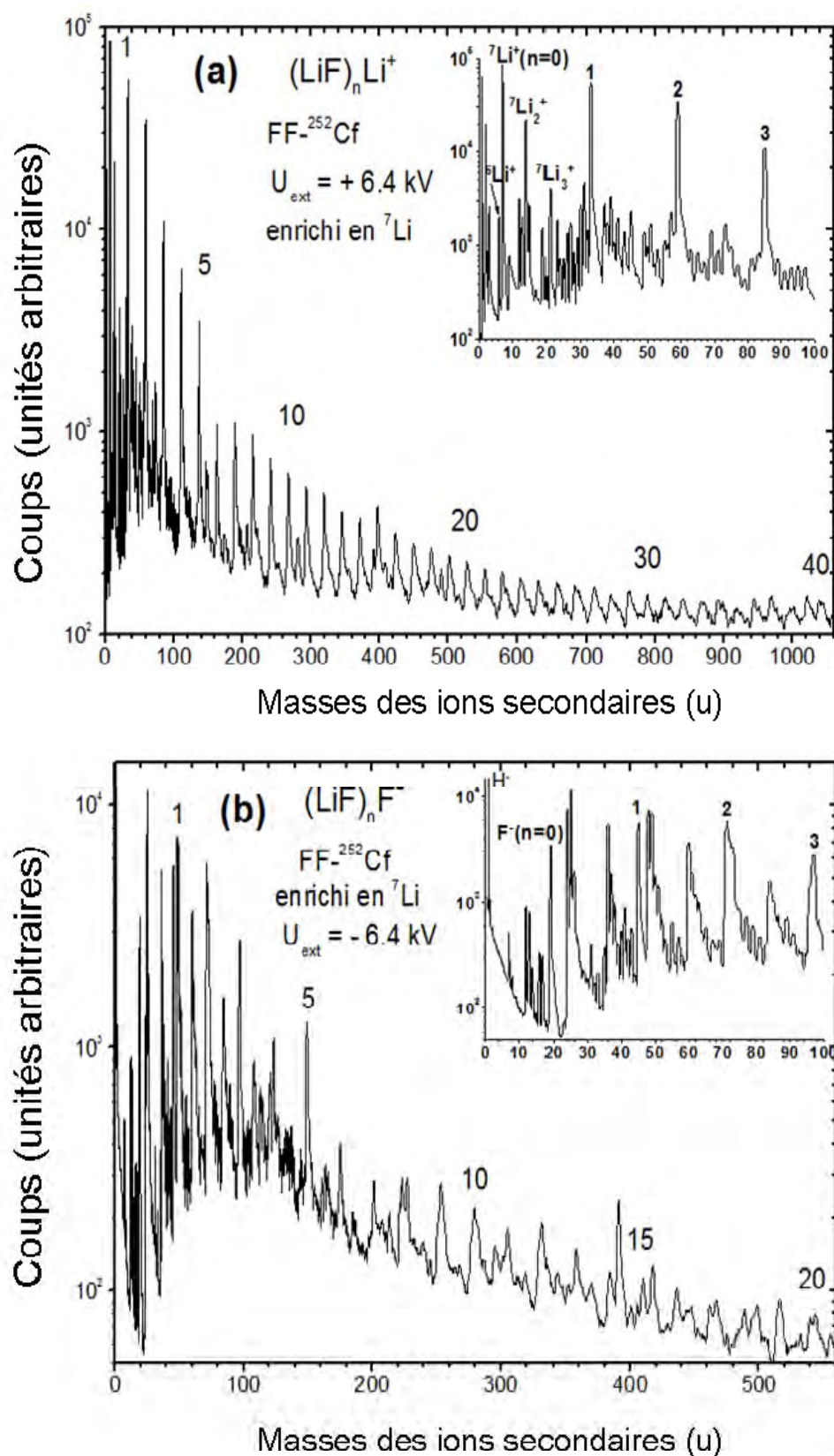
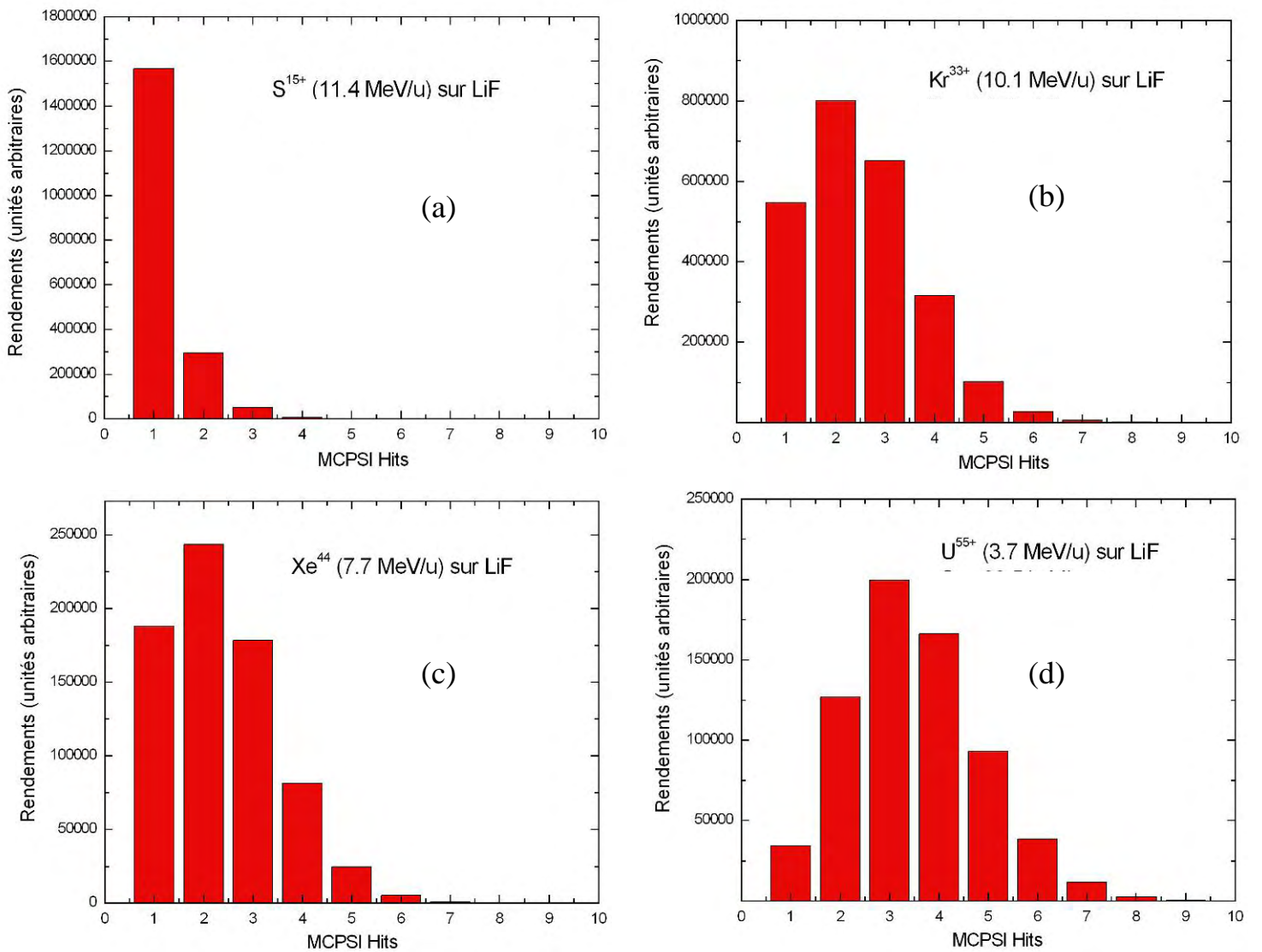


Figure IV-7 : Spectres de masse des ions (a) positifs et (b) négatifs pour une cible de LiF enrichi en ^7Li irradiée avec des FF.

IV.6 Multiplicité et perte d'énergie

Avec le système d'acquisition utilisé au GANIL, nous pouvons détecter et enregistrer jusqu'à 16 ions secondaires par événement (chapitre 3 § III). Pour un ion projectile, il est possible de détecter plusieurs ions secondaires. Les histogrammes IV-1 ci-dessous montrent l'évolution de la distribution concernant la multiplicité pour différents faisceaux : (a) de S^{15+} ($S_e = 1.8$ keV/nm), (b) de Kr^{33+} ($S_e = 8.3$ keV/nm), (c) de Xe^{44+} ($S_e = 17.2$ keV/nm) et (d) de U^{55+} ($S_e = 32.5$ keV/nm).



Histogramme IV-1 : Evolution du nombre d'ions secondaires pour une cible de LiF monocristallin irradiée par : (a) S^{18+} (11.4 MeV/u), (b) Kr^{33+} (10.1 MeV/u), (c) Xe^{44+} (7.7 MeV/u) et (d) U^{55+} (3.7 MeV/u).

Les histogrammes montrent la multiplicité associée aux ions secondaires. Elle augmente clairement en fonction de la perte d'énergie électronique du projectile. Dans le cas du soufre (S), la multiplicité varie de 1 à 4, 1 étant la multiplicité dominante. Pour les faisceaux de krypton (Kr) et de xénon (Xe), la multiplicité va jusqu'à 7 avec un maximum pour 2. Pour l'uranium (U), la multiplicité atteint 9 et nous observons en moyenne 3 à 4 ions secondaires par projectile.

Si nous supposons que les ions secondaires sont émis de façon indépendante les uns des autres, alors la distribution de la multiplicité doit être une distribution de Poisson avec

$$P(n) = \frac{\mu^n e^{-\mu}}{n!}$$

Où n est la valeur de la multiplicité, P la probabilité et μ la valeur moyenne de la multiplicité.

La figure IV-8 montre une comparaison de la distribution de Poisson et de la distribution de la multiplicité d'ions secondaires expérimentale.

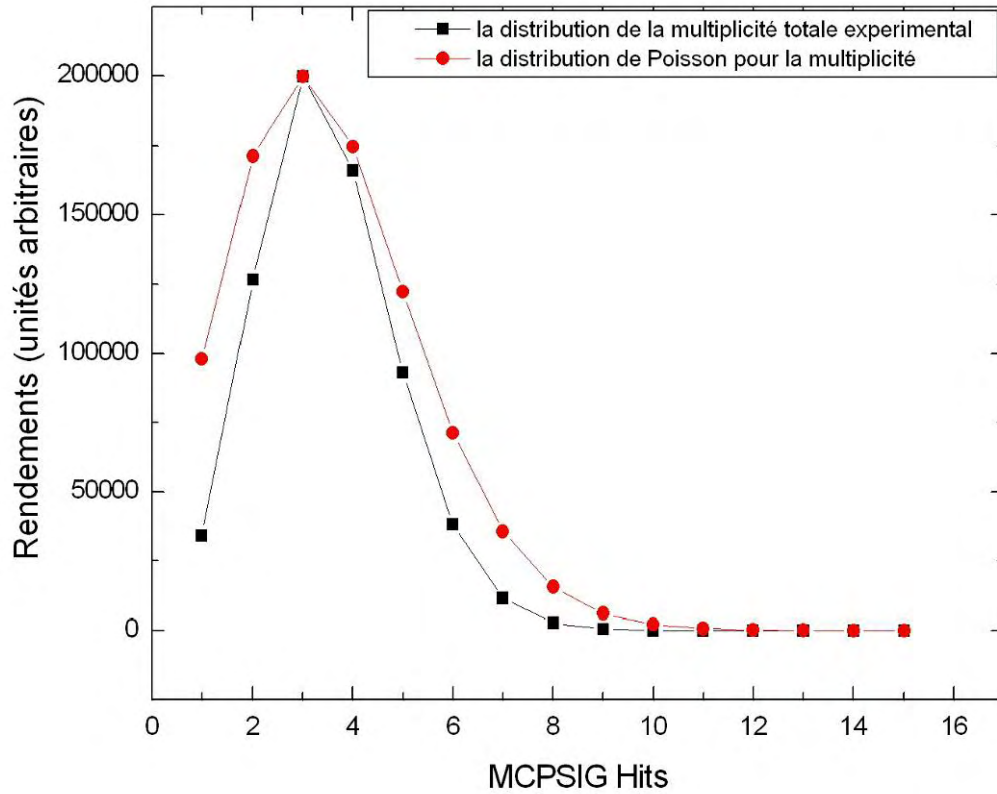


Figure IV-8 : Distribution de la multiplicité d'ions secondaires émis du LiF par U^{55+} (3.7 MeV/u) : expérimental (carrés) et un ajustement de la distribution de Poisson (cercles).

Nous observons un écart léger entre la distribution de Poisson et la distribution de la multiplicité totale des ions secondaires expérimentale.

Cet écart entre les deux distributions a également été observé ou mis en évidence pour des ions secondaires émis de Ge cristallin (100) et bombardé par des ions Pb^{72+} (28.6 MeV/u), dans le cas d'incidence suivant une orientation "quelconque" ("random") par C. Koumeir et al. [Koumeir 2008]. Selon leur analyse cet écart est dû à la fragmentation des grandes espèces.

La figure IV-9 montre l'évolution de la multiplicité μ en fonction de la perte d'énergie. On y voit clairement une augmentation linéaire avec une pente de 0.07 ion par unité de perte d'énergie.

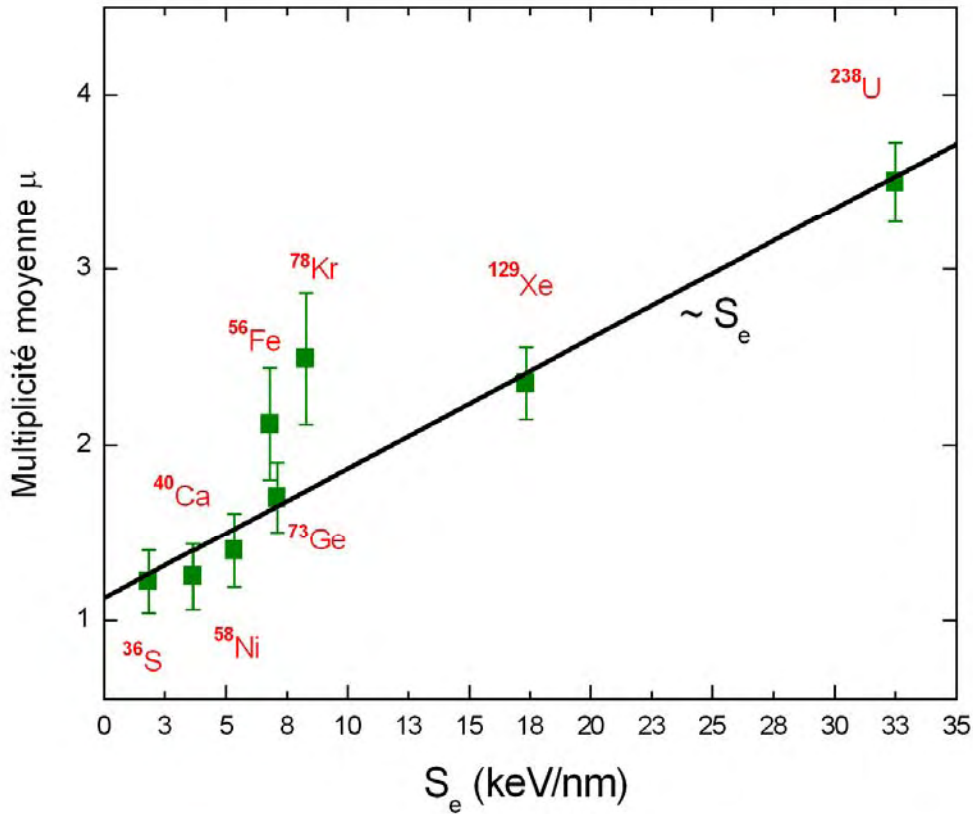


Figure IV-9 : Multiplicité moyenne des ions secondaires en fonction de la perte d'énergie électronique S_e .

Pour les ions secondaires émis de Ge monocristallin (100) et bombardé par des ions plomb dans le cas d'incidence suivant une orientation "quelconque" ("random") et en condition de canalisation selon l'axe $\langle 110 \rangle$ [Koumeir 2008], la multiplicité moyenne augmente linéairement avec la perte d'énergie.

Dans ce chapitre nous avons montré l'effet des diminutions des rendements des ions secondaires dans les conditions de vide standard. Nous avons démontré clairement l'importance des études expérimentales avec des surfaces bien préparées "in-situ" et dans des conditions d'ultra vide. Les spectres de masse montrent la prépondérance de l'émission sous forme d'agrégats. A partir de ces spectres nous allons étudier, dans le prochain chapitre, les rendements de production des ions secondaires, afin d'apporter des informations sur le processus de relaxation de l'énergie déposée et sur l'émission des ions secondaires.

Chapitre 5 : Rendements de production des ions secondaires

Introduction

Dans ce chapitre, nous nous intéressons aux rendements de production des ions secondaires (monomère Li^+ et agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$). Ces études permettent de tester, valider et affiner les différents modèles abordés au cours du chapitre 2 (exemple : modèle de l'onde de choc). Pour cela, nous étudions l'évolution des rendements de ces agrégats en fonction : 1) de la taille n de l'agrégat, 2) du pouvoir d'arrêt électronique S_e , 3) de l'angle d'incidence δ et 4) de l'état de charge q du projectile. Nous comparons ensuite les rendements totaux des agrégats positifs $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ avec ceux des agrégats négatifs $(\text{LiF})_n\text{F}^-$. Nous étudions également les rendements totaux des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l'agrégat pour une cible de LiF polycristallin évaporé en couches minces et une cible de LiF monocristallin (surface (100)). Nous discutons également le processus de production des agrégats.

V. Le rendement total des ions secondaires

V.1 Rendement en fonction de la taille n de l'agrégat : $Y=f(n)$

Comme nous l'avons démontré au cours du chapitre 4, les spectres de masse montrent que l'émission d'ions secondaires se fait majoritairement sous forme d'agrégats. La formation des molécules et des agrégats lors de l'émission de particules est une des questions fondamentales de la physique de la pulvérisation. A partir des spectres de masse obtenus par temps de vol, le rendement total de chaque ion émis par projectile incident a été déterminé. Le rendement $Y(n)$ ("Yield") est défini comme étant le nombre moyen de particules secondaires émises par projectile incident.

La figure V-1 montre un exemple de distribution des rendements totaux, avec une barre d'erreur d'environ 20 %, des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l'agrégat pour le système de collision Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF monocristallin (GANIL). Le rendement de production des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ diminue en fonction de n . Nous distinguons clairement deux régimes : 1) un régime pour les agrégats légers avec une forte pente ($n < 6$), et un régime pour les agrégats plus lourds ($n \geq 6$) avec une pente plus douce.

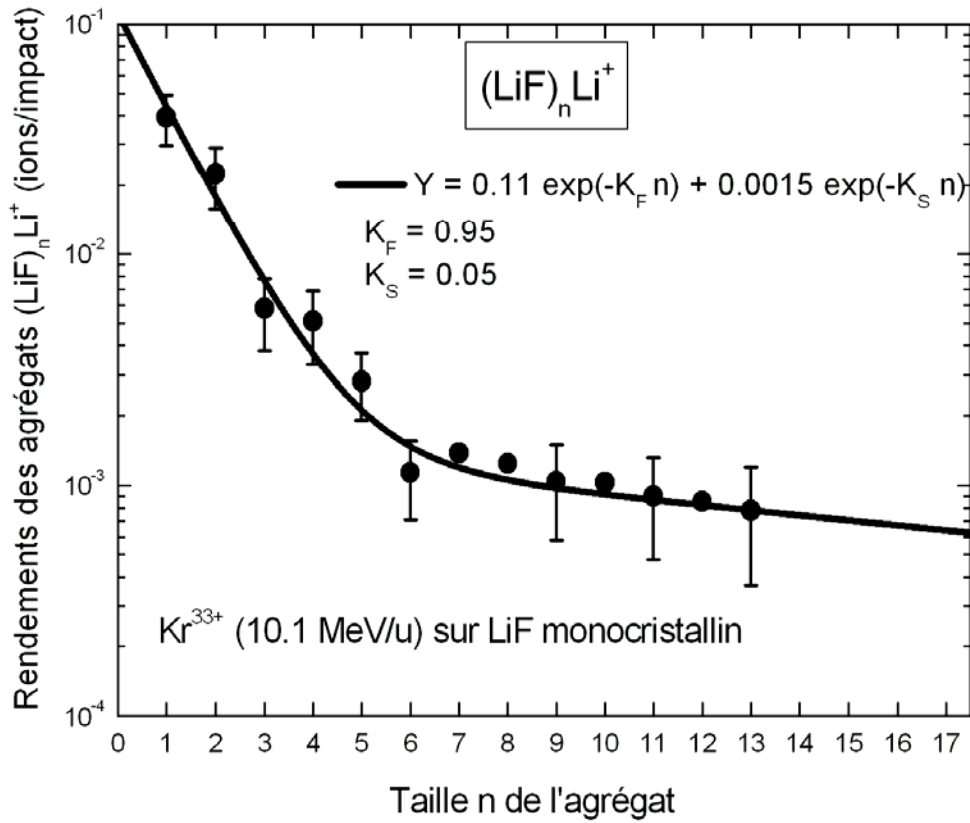


Figure V-1 : Rendement total de la série $(\text{LiF})_n \text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l'agrégat pour le système de collision $\text{Kr}^{33+} (10.1 \text{ MeV/u})$ sur LiF (monocristallin). Les données expérimentales sont "ajustées" par la somme de deux exponentielles (ligne continue) ($n < 6$ correspondant au régime "K Fast", $n \geq 6$ correspondant au régime "K Slow").

La figure V-2 montre les distributions des rendements totaux de la série d'agrégats $(\text{LiF})_n \text{Li}^+$ en fonction de la taille n des agrégats, pour les deux types de projectiles différents : 1) $\text{N}^{2+} (0.107 \text{ MeV/u})$ et 2) Fragments de Fissions ($\text{FF-}^{252}\text{Cf}$) pour une cible de LiF polycristallin (VDG). Nous observons clairement l'effet de la différence en perte d'énergie électronique entre N^{2+} ($S_e \approx 1 \text{ keV/nm}$) et $\text{FF-}^{252}\text{Cf}$ ($S_e \approx 11 \text{ keV/nm}$). Pour les deux cas, le rendement diminue en fonction de n . Nous distinguons clairement, comme pour le LiF monocristallin (figure V-1), les deux mêmes régimes ($n < 6$ et $n \geq 6$).

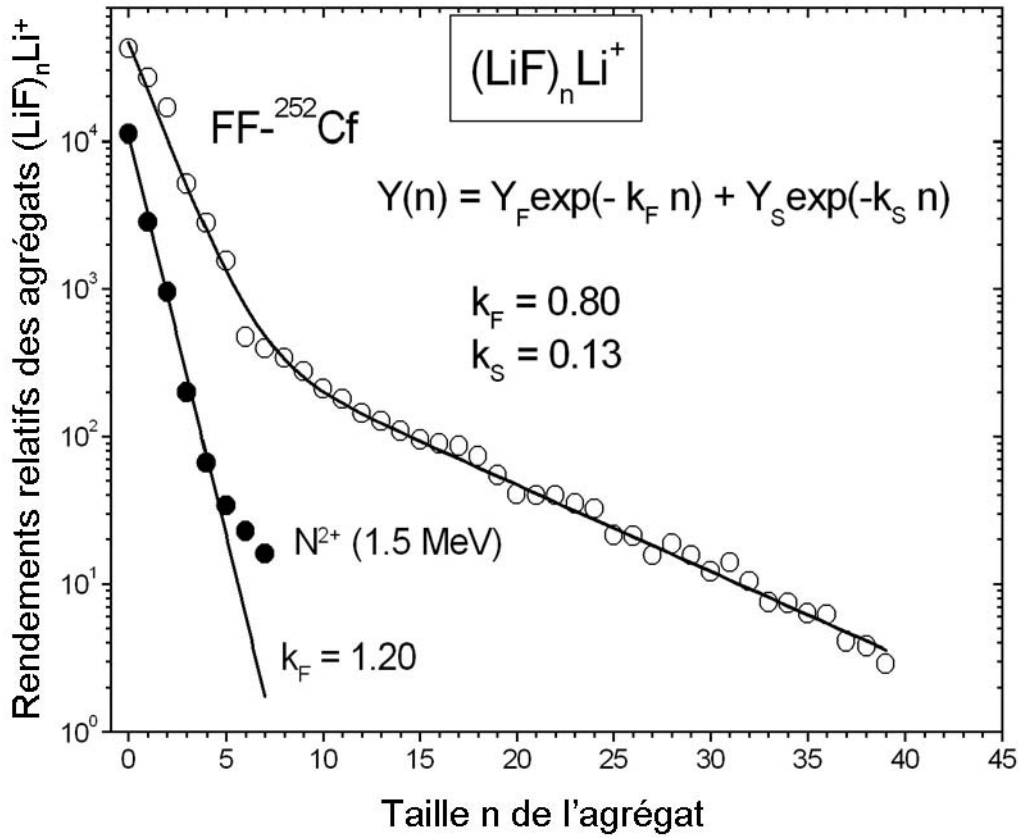


Figure V-2 : Rendements Y en fonction de la taille n de l'agrégat pour deux projectiles différents : (1) N^{q+} (cercles pleins) et (2) $FF-^{252}\text{Cf}$. Les données expérimentales sont "ajustées" par la somme de deux exponentielles (ligne continue) [Hijazi 2011].

Le mécanisme de l'émission des agrégats n'est pas parfaitement compris. Différents modèles sont considérés :

1- Les modèles "collectifs" d'éjection

a) Bitensky & Parilis [Bitensky 1987] (modèle de pulvérisation par onde de choc chapitre 2 § B-II.3, modèle analytique) se sont intéressés à l'émission d'agrégats. Ils traitent l'émission d'agrégats comme résultant d'une onde de choc et trouvent une loi en puissance $Y(n) \sim n^{-\alpha}$ (équation V-1) avec $\alpha = 2$. Dans le cas du bombardement d'une cible isolante par des ions lourds rapides, le fort taux d'ionisation dans le sillage de l'ion lourd projectile dans la cible conduit à un transfert d'énergie cinétique via une explosion coulombienne (EC). Par la suite, l'onde de choc

générée par cette EC peut conduire à l'ablation de la surface et à l'émission des particules (atomes, agrégats).

b) H.M. Urbassek [Urbassek 1988] (transition thermodynamique de phase liquide/gaz, modèle de simulation dynamique moléculaire chapitre 2 § B-II.1) interprète l'émission d'agrégats d'un point de vue purement thermodynamique. En refroidissant, la zone irradiée peut alors subir une transition de phase gaz-liquide pendant laquelle se forment les agrégats. D'après cet auteur, c'est durant cette transition de phase hors équilibre que les agrégats sont pulvérisés, et la fraction d'atomes pulvérisés sous forme d'agrégats présente alors une variation en $Y(n) \sim n^{-\alpha}$ avec $\alpha = 7/3$, n représentant la taille de l'agrégat.

2- Les modèles "statistiques"

Contrairement aux modèles "collectifs", les modèles "statistiques" supposent une agrégation des atomes au cours du processus d'éjection. Ces modèles prédisent une dépendance en exponentielle de $Y(n)$ en fonction de la taille de l'agrégat [Gerhard 1975, Können 1974]. Il existe cependant d'autres distributions statistiques telles que la fonction lognormale (V-2) et la distribution gaussienne (V-3) [Espiau 2006].

$$Y(n) = \frac{A_1}{\omega_{c1} n \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\left(\ln\left(\frac{n}{x_{c1}}\right)\right)^2 / 2\omega_{c1}^2\right) + \frac{A_2}{\omega_{c2} n \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\left(\ln\left(\frac{n}{x_{c2}}\right)\right)^2 / 2\omega_{c2}^2\right) \quad (V-2)$$

$$Y(n) = \frac{A_1}{\omega_{c1} n \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\left(\ln\left(\frac{n}{x_{c1}}\right)\right)^2 / 2\omega_{c1}^2\right) + \frac{A_2}{\omega_{c2} \sqrt{\frac{\pi}{2}}} \exp\left(-2(n - x_{c2})^2 / \omega_{c2}^2\right) \quad (V-3)$$

Où n est la taille de l'agrégat, $x_{c1,2}$ et $\omega_{c1,2}$ sont la moyenne et l'écart type du logarithme de la variable (car par définition, le logarithme de la variable est distribué selon une loi normale de moyenne x_c et d'écart-type ω_c).

La fonction lognormale décrit un effet basé sur le *produit* de nombreuses voies possibles et statistiquement indépendantes. Par exemple, l'agrégat $n = 4$ est constitué par le produit de 4 processus de collage.

M. Von Smoluchowski [Von Smoluchowski 1916] a fait le lien entre les distributions lognormales des agrégats observés expérimentalement et les descriptions théoriques. Cette étude concerne les processus d'agrégation. Il a développé un modèle basé sur les deux hypothèses suivantes :

- i) la formation d'agrégat commence à partir d'une population de monomères. Cette formation est le résultat d'une succession de collisions binaires entre des agrégats de toutes tailles ;
- ii) ces collisions binaires entre les espèces conduisent à une fusion irréversible. Une fois formés, les agrégats ne peuvent plus se casser [Espiau 2006].

La distribution Gaussienne est applicable pour décrire un effet basé sur une *somme* de plusieurs voies possibles et statistiquement indépendantes. Par exemple, l'agrégat $n = 30$ est formé par collage de ($n = 25$ et $n = 5$) ou ($n = 20$ et $n = 10$) ou ($n = 27$ et $n = 3$) etc.

Supposons d'abord que la formation/émission des agrégats est due aux processus collectifs. Elle peut donc être décrite par une loi de puissance, équation V-1. La figure V-3 représente un exemple de comparaison entre nos résultats expérimentaux et les prédictions (sous forme ajustement numérique) des modèles $n^{-\alpha}$, avec $\alpha = 2$ [Boudjadar 2005, Staudt 2002, Rhen 2001, Hamza 1999, Wucher 1996] (ligne continue) et $\alpha = 7/3$ [Urbassek 1988] (ligne pointillée).

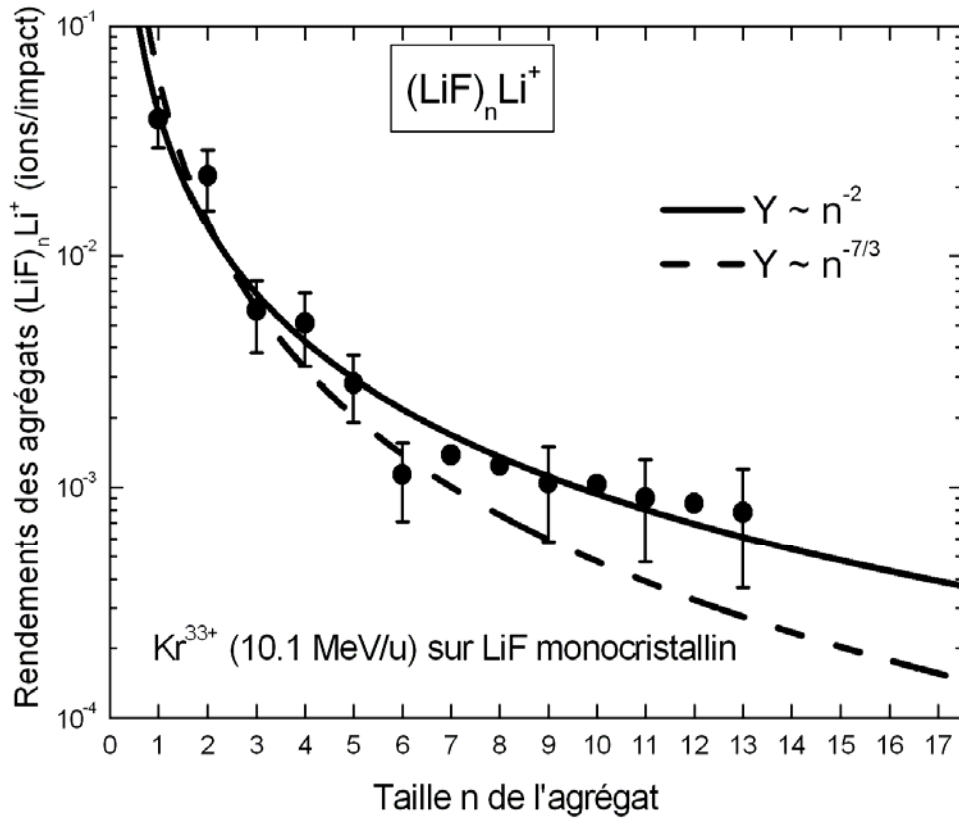


Figure V-3 : Comparaison entre la distribution expérimentale et les prédictions (sous forme d'ajustement) des modèles $n^{-\alpha}$, avec $\alpha = 2$ et $\alpha = 7/3$.

Nous remarquons que la distribution expérimentale de $Y(n)$ ne peut pas être décrite par une loi de la puissance en $n^{-7/3}$, tandis qu'elle peut l'être par une loi en n^{-2} (modèle de l'onde de choc). Ce modèle décrit correctement l'évolution générale de $Y(n)$, excepté pour l'agrégat $n = 6$ dont le rendement est significativement inférieur. Des calculs théoriques sur la stabilité des agrégats de LiF ont été réalisés (DFT, Density Functional Theory) [Fernandez-Lima 2009]. Ces calculs ne mettent pas en évidence un comportement singulier pour $n = 6$.

Examinons maintenant la comparaison entre nos résultats expérimentaux et le modèle de recombinaison statistique. Nous avons vu qu'il existe plusieurs fonctions pouvant décrire nos distributions expérimentales (somme de deux fonctions exponentielles, somme de deux fonctions lognormale et somme de deux distributions gaussiennes).

Les figures V-1 et 2 montrent plusieurs exemples de l'évolution de $Y(n)$ des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$. Les distributions peuvent être "ajustées" par une fonction correspondant à la somme de deux exponentielles. Chaque exponentielle correspondant aux deux régimes précédemment observés (voir figure V-1), équation V-4 :

$$Y(n) = Y_F \exp(-k_F n) + Y_S \exp(-k_S n) \quad (\text{V-4})$$

Les paramètres K_F et K_S dépendent de la perte d'énergie du projectile dans la cible, mais également de l'épaisseur de cette dernière (paragraphe suivant). Le tableau ci-dessous montre les valeurs de K_F et K_S pour différents projectiles.

Projectiles	Pouvoir d'arrêt électronique (keV/nm)	K_F	K_S
$^{14}\text{N}^{2+}$	1.0	1.20	
$^{40}\text{Ca}^{18+}$	3.65	1.15	
$^{56}\text{Fe}^{22+}$	6.80	0.95	0.05
$^{78}\text{Kr}^{33+}$	8.27	0.95	0.05
$^{129}\text{Xe}^{44+}$	17.23	0.85	0.06

Tableau V-1: Evolution des paramètres K_F et K_S en fonction de la perte d'énergie du projectile dans le LiF.

Quelle que soit la perte d'énergie électronique, les petits agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ du premier régime ($n \leq 5$) correspondant au K_F sont toujours observables. La valeur de K_F diminue en fonction de la perte d'énergie électronique dans la cible de LiF. Par exemple, le rapport du rendement de production d'agrégat $(\text{LiF})_4\text{Li}^+ / (\text{LiF})\text{Li}^+$ varie de 0.031 à 0.10 pour des S_e allant de 3.7 keV/nm (faisceau de Ca) à 8.3 keV/nm (Kr) respectivement.

Il est également intéressant de remarquer qu'il existe un *effet de seuil* pour les gros agrégats ($n \geq 6$) du deuxième régime K_S . A partir d'un pouvoir d'arrêt électronique **de 6.8 keV/nm** (correspondant au faisceau de Fe (4.8 MeV/u)), ces agrégats sont observables. Il est aussi à noter que cette comparaison a été réalisée avec un nombre de projectiles comparable.

Nous allons maintenant étudier l'effet de l'angle d'incidence sur les paramètres K_F et K_S . La figure V-4 montre les rendements de production des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l'agrégat pour le système de collision Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur une surface (100) de LiF cristallin, pour $\delta = 35^\circ$ et $\delta = 60^\circ$ (par rapport à la normale à la surface). Le rendement total de la série d'agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$, dans les deux cas, est normalisé sur le rendement du premier agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$.

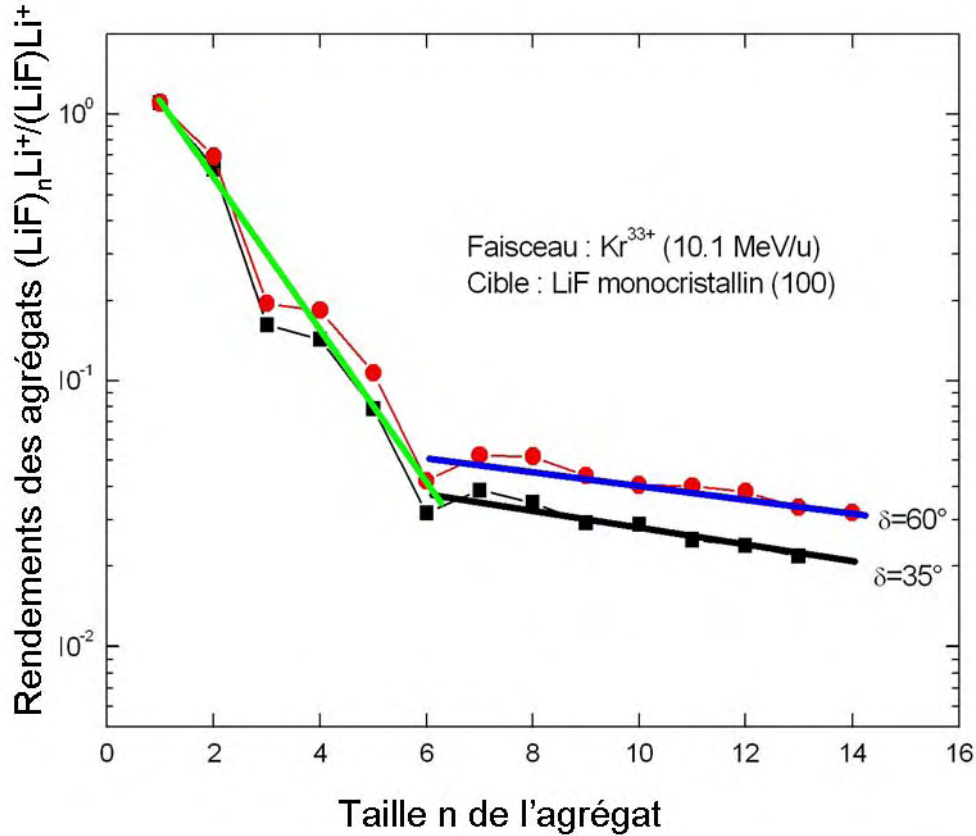


Figure V- 4 : Rendement $Y(n)$ de la série $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$, normalisé sur le premier agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$, en fonction de la taille n de l'agrégat pour les systèmes de collisions : Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF monocristallin (100), pour $\delta = 35^\circ$ (carrés) et $\delta = 60^\circ$ (cercles).

Nous observons que les rendements de production des agrégats augmentent en fonction de l'angle d'incidence (détaillé dans le §V.6). Les paramètres K_F et K_S sont indépendants de l'angle d'incidence.

Le comportement en double exponentielle a déjà été observé pour des cibles de gaz condensés (glaces) bombardées par des $\text{FF-}^{252}\text{Cf}$ et des ions projectiles N^{q+} [Collado 2004, Martinez 2006]. La somme de deux exponentielles caractérise deux régimes différents.

Nos résultats ne permettent pas de distinguer clairement lequel parmi ces modèles précédents peut expliquer la formation/émission des agrégats, car différentes distributions permettent de reproduire l'évolution de $Y(n)$ en fonction de n [Hijazi 2011].

Dans le prochain paragraphe, nous allons étudier l'émission des ions secondaires en fonction de l'épaisseur de la cible LiF avec le système d'ultra vide AODO sur la ligne SME-GANIL.

V.2 Rendements des agrégats en fonction de l'épaisseur du LiF (SME-GANIL)

Quel que soit le pouvoir d'arrêt électronique, les petits agrégats ($n < 6$) correspondant au premier régime K_F sont toujours observables. Pour les pouvoirs d'arrêt électronique jusqu'à 3.7 keV/nm, les gros agrégats ($n \geq 6$) correspondant au deuxième régime K_S ne sont pas observables. A partir d'un seuil de pouvoir d'arrêt électronique de 6.8 keV/nm, ce régime est observable. Les deux paramètres, K_F et K_S , sont indépendants de l'angle d'incidence. Nous allons maintenant étudier l'évolution de ces deux paramètres en fonction de l'épaisseur de la cible de LiF.

La figure V-5 montre les rendements de production des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l'agrégat pour le système de collision Ge^{28+} (9.12 MeV/u) sur une couche de LiF évaporée d'épaisseur variable (0.6 nm, 1.4 nm, 2 nm, 4 nm, 11 nm, 30 nm et 100 nm).

Nous présentons sur la même figure les rendements de production des agrégats en fonction de la taille n de l'agrégat pour le système de collision Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF cristallin (surface (100)) (*losanges verts*).

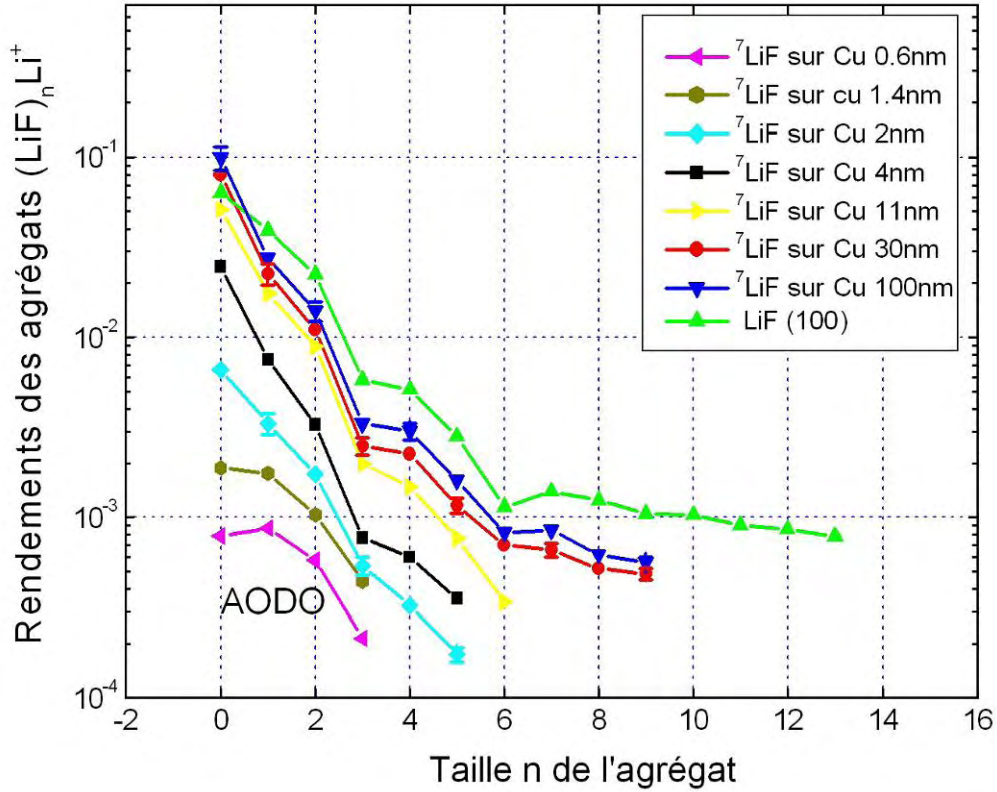


Figure V-5 : Rendement $Y(n)$ de la série $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l'agrégat pour les systèmes de collisions : 1) Ge^{28+} (9.12 MeV/u) sur LiF polycristallin (épaisseur de 0.6 à 100 nm) et 2) Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF monocristallin (100).

Nous constatons que :

- 1- Les rendements de production des ions secondaires sont nettement supérieurs pour une cible monocristalline (cible massive) par rapport à une cible polycristalline. Le phénomène inverse a été observé pour des cibles de LiF préparées “ex-situ” et irradiées par $\text{FF-}^{252}\text{Cf}$ (chapitre 4 §IV.1). Cette différence de comportement pourrait être expliquée par les conditions de préparation des cibles à l’université catholique de Rio (vide standard).
- 2- Les rendements totaux de production des agrégats augmentent avec l’épaisseur de la couche de LiF évaporée.
- 3- Pour toutes les cibles de LiF d’épaisseur supérieur à 2 nm, les petits agrégats $n < 6$ sont observables et la valeur de K_F ne change pas.

- 4- Les gros agrégats, à partir de $n > 6$, ne sont pas observables pour les cibles de LiF évaporées d'une épaisseur entre 0.6 nm et 11 nm. Ces agrégats sont néanmoins clairement observables pour des cibles de LiF évaporées d'une épaisseur supérieure ou égale à 30 nm.
- 5- Le rapport des rendements de production du monomère (Li^+)/agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$ augmente avec l'épaisseur de la couche. Il varie de 0.9 à 3.9 pour des épaisseurs allant respectivement de 0.6 nm à 100 nm.
- 6- Les rendements totaux de production des agrégats pour les cibles massives, LiF polycristallin 30-100 nm et LiF monocristallin, sont comparables.

La figure V-6 présente une comparaison entre les rendements de production des agrégats $n = 1$ et 5 du premier régime (correspondant au K_F) et des agrégats $n = 7$ et 8 du deuxième régime (correspondant au K_S) en fonction de l'épaisseur de LiF.

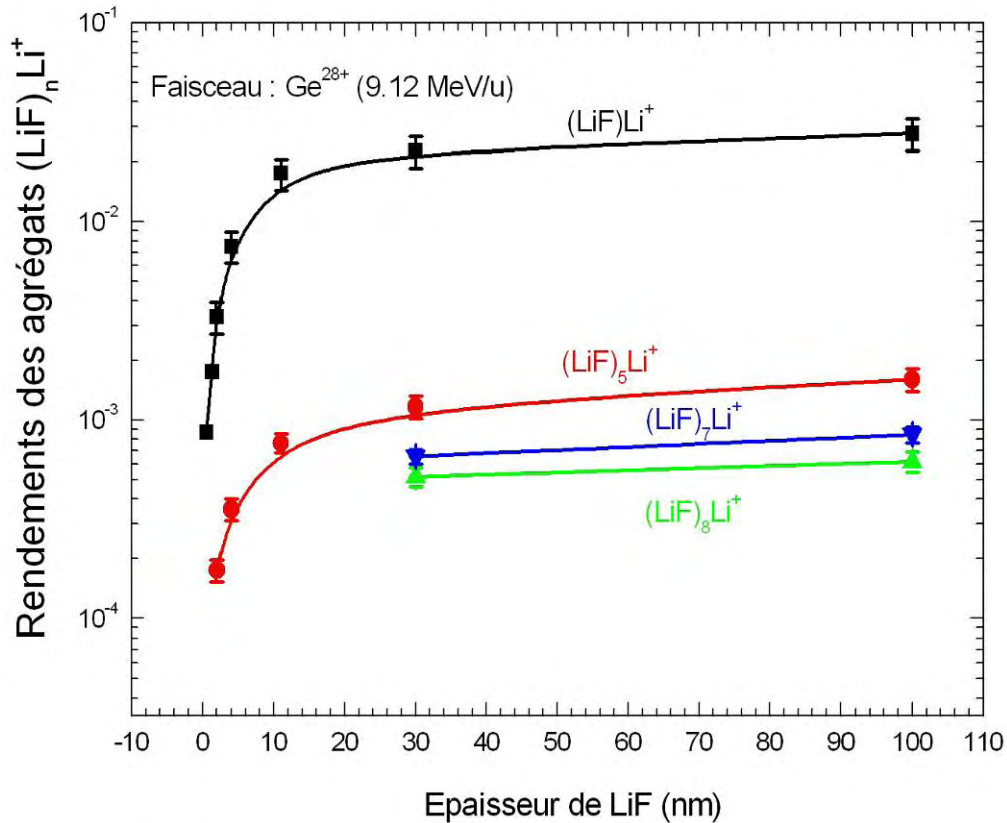


Figure V-6 : Rendement $Y(n)$ des agrégats $(\text{LiF})_n \text{Li}^+$ en fonction de l'épaisseur de LiF irradié par l'ion Ge^{28+} (9.12 MeV/u).

Quelle que soit l'épaisseur de la cible de LiF, les agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ du premier régime ($n < 6$), K_F , sont toujours observables. Nous remarquons que les agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ du deuxième régime ($n \geq 6$) (exemple $n = 7$ et 8, figure V-6), K_S , ne sont pas observables pour des épaisseurs faibles (comprises entre 0.6 et 11 nm). A partir **d'un seuil d'épaisseur de 30 nm**, il y a émission de ces agrégats.

Dans la figure V-7, nous comparons les rendements de production des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l'agrégat pour LiF monocristallin (surface (100)) et LiF polycristallin (100 nm). Le rendement Y de la série d'agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ est, dans les deux cas, normalisé sur le rendement du premier agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$. Le LiF monocristallin et le LiF polycristallin montrent des comportements comparables dans les deux régimes : la distribution est indépendante de la structure microscopique de la cible.

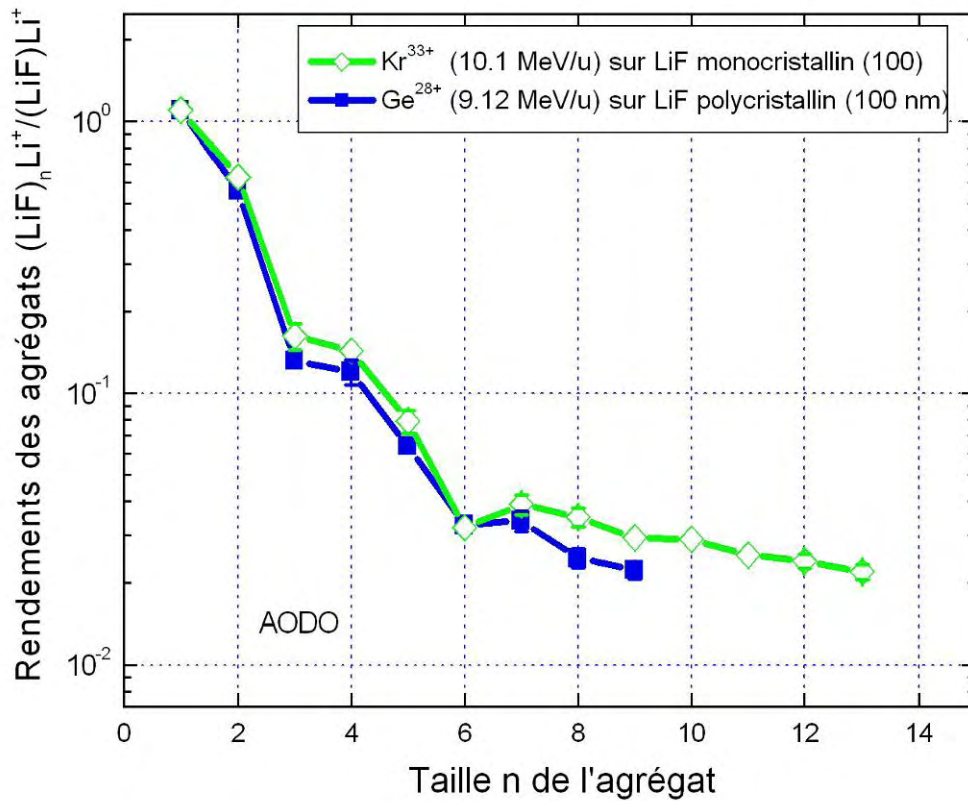


Figure V- 7 : Rendement $Y(n)$ de la série $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$, normalisé sur le premier agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$, en fonction de la taille n des agrégats pour les systèmes de collisions : 1) Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF monocristallin (100) (losanges) et 2) Ge^{28+} (9.12 MeV/u) sur LiF polycristallin évaporé sur Cu d'épaisseur 100 nm (carrés).

L'augmentation des rendements de production en fonction de l'épaisseur de l'échantillon a été étudiée par les fragments de fissions de ^{252}Cf [Danigel 1983, Bolbach 1987, Säve 1987]. Des films organiques de Langmuir-Blodgett ont été utilisés pour obtenir des résultats quantitatifs en fonction de l'épaisseur de l'échantillon [Della-Negra 1990, Bolbach 1987, Säve 1987]. Ces études ont montré que les agrégats sont probablement émis à partir des couches proches de la surface [Della-Negra 1990]. Nos résultats obtenus, pour une cible de LiF polycristallin, montrent que l'on peut décomposer l'émission des agrégats en deux parties :

- 1) Des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ pour $n < 6$ provenant d'une couche proche de la surface d'environ 4 nm.
- 2) Des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ avec $n \geq 6$ provenant du dépôt d'énergie en profondeur de la cible, "bulk", d'une couche à partir de 30 nm.

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe V-1, il pourrait y avoir deux mécanismes différents de l'émission/formation des petits agrégats ($n < 6$) et des gros agrégats ($n \geq 6$).

V.2.1 Bilan

A partir de la mesure de l'ensemble des rendements de production des agrégats, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- Quel que soit l'ion projectile, les petits agrégats du premier régime jusqu'à $n = 5$ (correspondant au K_F) sont toujours observables. Le paramètre K_F diminue en fonction du pouvoir d'arrêt électronique.
- Un effet de *seuil du pouvoir d'arrêt* électronique pour le deuxième régime (correspondant au K_S) a été mis en évidence. À partir d'un pouvoir d'arrêt électronique de **6.8 keV/nm** environ, les agrégats plus grands ($n \geq 6$) sont observables.
- Le paramètre K_F est indépendant de l'épaisseur de la cible de LiF.
- Un effet de *seuil sur l'épaisseur* de la cible de LiF pour les gros agrégats (à partir de $n \geq 6$) du deuxième régime (correspondant au K_S) a été observé. A partir d'une épaisseur de **30 nm** les agrégats de ce régime sont observables.
- Les deux paramètres K_F et K_S sont indépendants de l'angle d'incidence δ .

V.3 Rendement en fonction de n : comparaison entre ions positifs et ions négatifs (FF)

Les distributions $Y(n)$ pour les ions secondaires positifs et négatifs sont montrées sur la figure V-8. Nous observons que les rendements des ions positifs sont environ 6 fois plus grands que ceux des ions négatifs. Les distributions des rendements des ions négatifs et positifs évoluent de la même manière en fonction de la taille n de l'agrégat, à l'exception de $n = 0$ et $n = 1$. Cette évolution peut être décomposée en trois parties différentes :

- i) Des masses légères ($n = 0$ et 1) où les deux distributions ont des dérivées opposées ;
- ii) Des masses moyennes ($2 \leq n \leq 5$) où elles ont le même comportement et une grande dérivée ;
- iii) Des masses lourdes ($n \geq 6$) où elles présentent le même comportement et une faible dérivée ;

Nous observons les mêmes paramètres que précédemment K_F et K_S (excepté $n = 0$ et 1 pour les ions négatifs). En ce qui concerne la région $n = 0$ et 1 les deux distributions sont asymétriques. Une raison évidente de l'asymétrie des distributions est la conservation de la charge et l'existence de l'émission d'électrons secondaires qui favorise l'émission des ions secondaires positifs [voir Hijazi 2011].

En outre, l'énergie d'attachement électronique des électrons est beaucoup plus faible pour les ions F^- que pour les ions Li^+ . La conséquence principale de l'émission des électrons est la neutralisation du F^- ou du $(LiF)_nF^-$. Lors de l'impact et de l'émission secondaire des ions, les espèces Li^+ et F^- ont une forte probabilité d'être excités électroniquement. En particulier l'ion Li^{*+} peut être détecté comme tel, tandis que F^{*-} , n'ayant pas des états excités stables, se dissocie rapidement en $F^0 + e^-$. Ce fait accentue la forte asymétrie entre les rendements de désorption du Li^+ et du F^- [Hijazi 2011, Fernandez-Lima 2009].

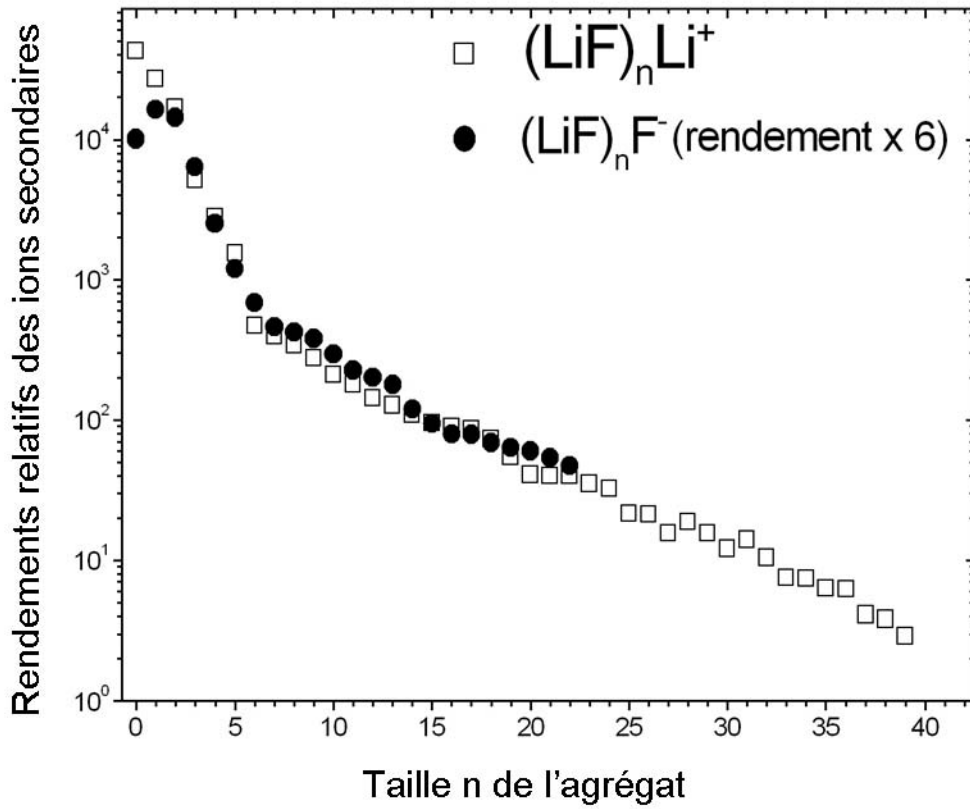


Figure V-8 : Rendements $Y(n)$ des agrégats en fonction de la taille n de l'agrégat : des ions positifs (carrés) et négatifs (ronds) de LiF polycristallin induits par $\text{FF}^{-252}\text{Cf}$.

V.4 Rendement en fonction de la perte d'énergie électronique S_e : $Y=f(S_e)$ (GANIL)

Nous allons maintenant nous intéresser à l'évolution des rendements de pulvérisation des ions secondaires Y en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S_e , pour un angle d'incidence $\delta = 35^\circ$ par rapport à la normale de la surface de la cible.

Dans un premier temps, nous comparons nos résultats avec les résultats des neutres obtenus avec une même cible de LiF monocristallin (technique "catcher", voir chapitre §VI.3 et annexe 4) [Toulemonde 2003, Toulemonde 2002]. Pour pouvoir réaliser cette comparaison, nous avons choisi d'étudier les ions secondaires qui sont sous la forme d'agrégats $(\text{LiF})_n \text{Li}^+$ (donc des agrégats de $(\text{LiF})_n$ auxquels est attaché un ion Li^+).

Dans un second temps, nous comparons les résultats obtenus pour les ions et les neutres avec les prévisions du modèle de la pointe thermique “i-TS” (“inelastic-Thermal Spike”) [Assmann 2007, voir chapitre 2 § B-II.1].

Pour les ions secondaires positifs deux régimes différents sont observés :

1) Régime 1 (de S à Kr) figure V-9 :

Les rendements de pulvérisation pour l’ion secondaire $(\text{LiF})\text{Li}^+$, multipliés par 2×10^5 , varient suivant une loi de la forme $Y \sim S_e^2$ tandis que ceux des neutres varient suivant une loi de la forme $Y = a \times S_e^4$. Le modèle de la pointe thermique “i-TS” (carrés noirs sur la figure V-9) prédit également une dépendance du rendement de pulvérisation en fonction du dépôt d’énergie $Y = b \times S_e^4$. Concernant les rendements mesurés pour les neutres et les prévisions du modèle de la pointe thermique, on observe que, bien que la dépendance en S_e soit la même, un écart de presque deux ordres de grandeurs est observé.

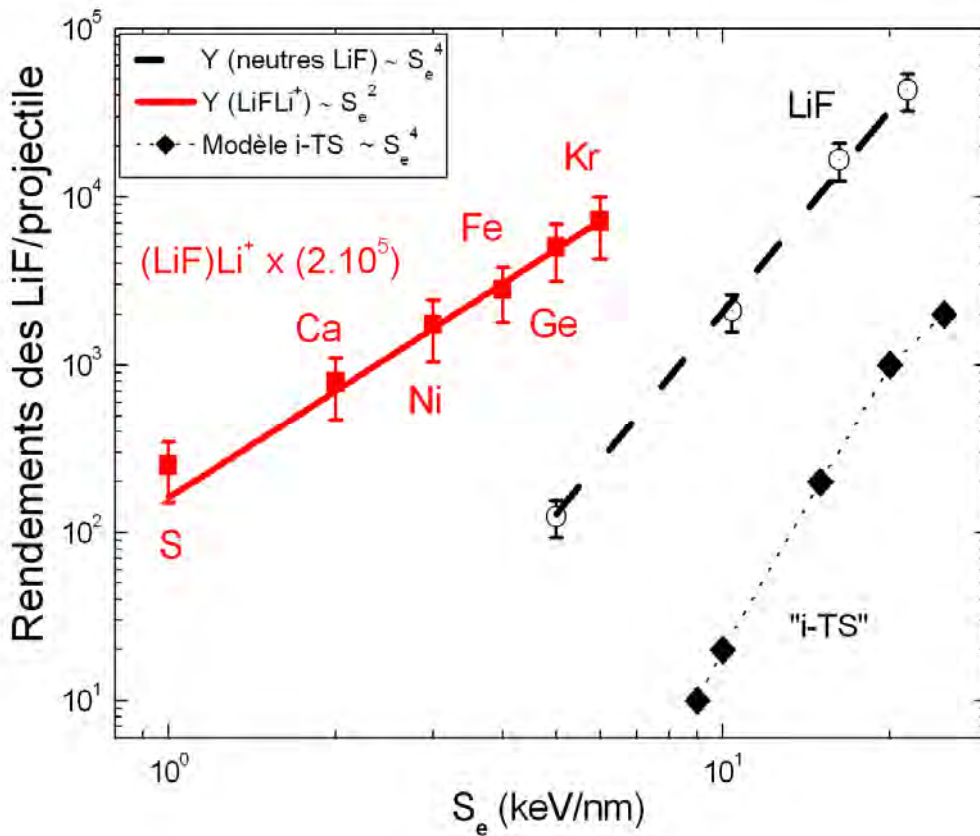


Figure V-9 : Rendement Y en fonction du pouvoir d’arrêt électronique S_e : (rouge) pour l’ion $(\text{LiF})\text{Li}^+$ multiplié par 2×10^5 (entre S et Kr) ; (noir) pour les neutres (LiF) émis d’une cible de LiF en comparaison avec le modèle “i-TS”.

Nous constatons que :

- 1- La comparaison neutres/ions montre que la dépendance en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S_e est différente. Cela indique que les processus de production associés doivent être différents.
- 2- Le modèle "i-TS" reproduit bien la dépendance en S_e^4 pour les neutres, ce qui n'est pas le cas pour les rendements des ions secondaires.

2) Régime 2 (de Kr à U) figure V-10 :

Les rendements de pulvérisation pour les ions secondaires dans ce régime sont stationnaires pour un pouvoir d'arrêt supérieur à celui du Kr (*seuil* = **8.3 keV/nm**) (figure V-10). L'augmentation du dépôt d'énergie n'a plus d'effet sur les rendements qui restent constants quel que soit le pouvoir d'arrêt associé.

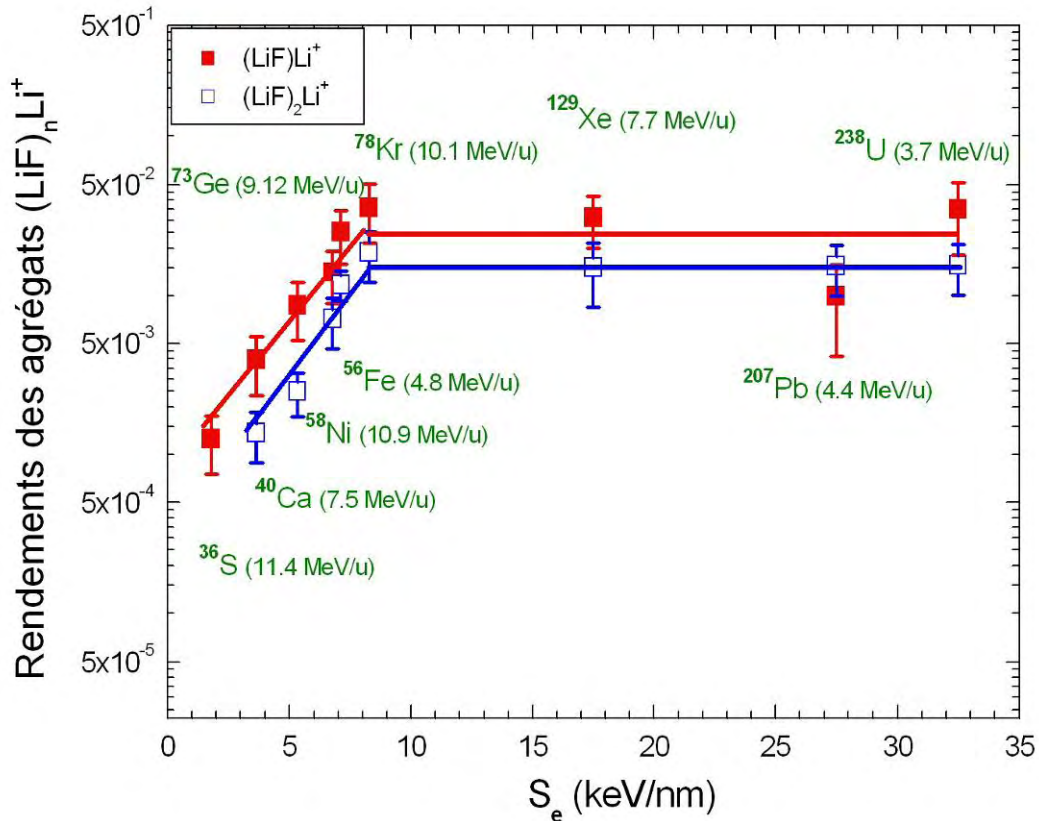


Figure V-10 : Rendement Y de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S_e : pour l'ion $(LiF)Li^+$ (carrés pleins) et l'ion $(LiF)_2Li^+$ (carrés).

L'effet de saturation observé dans le régime des fortes perturbations ($Z_1 > 30$, c'est-à-dire à partir du Kr) peut s'expliquer par la saturation de l'ionisation primaire. G. Schiwietz et al. [Schiwietz 1996], voir aussi [Caron 1999], ont démontré que pour des cibles de faible Z_1 comme le carbone, à 5 MeV/u, dans le cœur de la trace, l'ionisation est complète. Dans un temps de l'ordre de quelques femtosecondes dans le carbone, qui est un conducteur, tous les atomes de la cible sont complètement ionisés. Dans un isolant comme le LiF, avec des temps de relaxation plus grand que dans le cas d'un conducteur, cet état d'extrême ionisation peut persister bien plus longtemps. Ceci est un argument pour l'application d'un modèle d'explosion coulombienne entre deux noyaux complètement épluchés de leurs électrons (Li^{3+} et F^{9+}), comme nous le développerons dans le chapitre 6 §VI.2.3. Ceci mène à un effet de saturation des rendements des électrons secondaires, qui ne s'explique pas dans le cadre de théories de faible perturbation ("réponse linéaire"), qui prédisent une augmentation proportionnelle au paramètre de perturbation (paramètre de Sommerfeld), q^2/v_p^2 (voir chapitre 2 §A-V.1). Les effets de forte perturbation et des possibilités de traitement théorique au-delà de la réponse linéaire ont été discutés par Beuve et al. [Beuve 2002]. Ceci signifie qu'au-delà de ce seuil ($S_e > 8.3$ keV/nm) un dépôt plus grand d'énergie sur les électrons de la cible n'affecte plus les atomes au cœur même de la trace, et les rendements de molécules détruites et fragmentées saturent.

Pour la cible a-C, le traitement théorique est très similaire. La comparaison avec les données expérimentales montre un bon accord, en particulier pour les grandes perturbations. Ainsi, il y a une ionisation complète du carbone pour les ions lourds avec $Z_1 > 30$ à 5 MeV/u.

V.5 Rendement des agrégats en fonction de la charge q du N^{q+} (VDG)

Les expériences réalisées au VDG de la PUC de Rio ont permis d'étudier la dépendance des rendements de désorption $Y_q(n)$ des ions secondaires en fonction de la charge q du projectile N^{q+} (1.5 MeV). Cette dépendance a été établie pour les agrégats $(LiF)_nLi^+$. Dans la figure V-11, les rendements de désorption pour les quatre premiers agrégats $(LiF)_nLi^+$ ($n = 0, 1, 2, 3$) sont présentés pour q variant de 4 à 6 et avec une vitesse constante de 0.1 MeV/u [Hijazi 2011].

D'autres résultats existent dans la littérature [Wien 1987] pour des systèmes de collisions projectile-cible différents (cibles d'hydrocarbures irradiées par des projectiles Ne, Ar, Kr à 1.16 MeV/u). Ils montrent que le rendement total augmente en fonction de l'état de charge du projectile, notamment en q^3 pour H^+ émis.

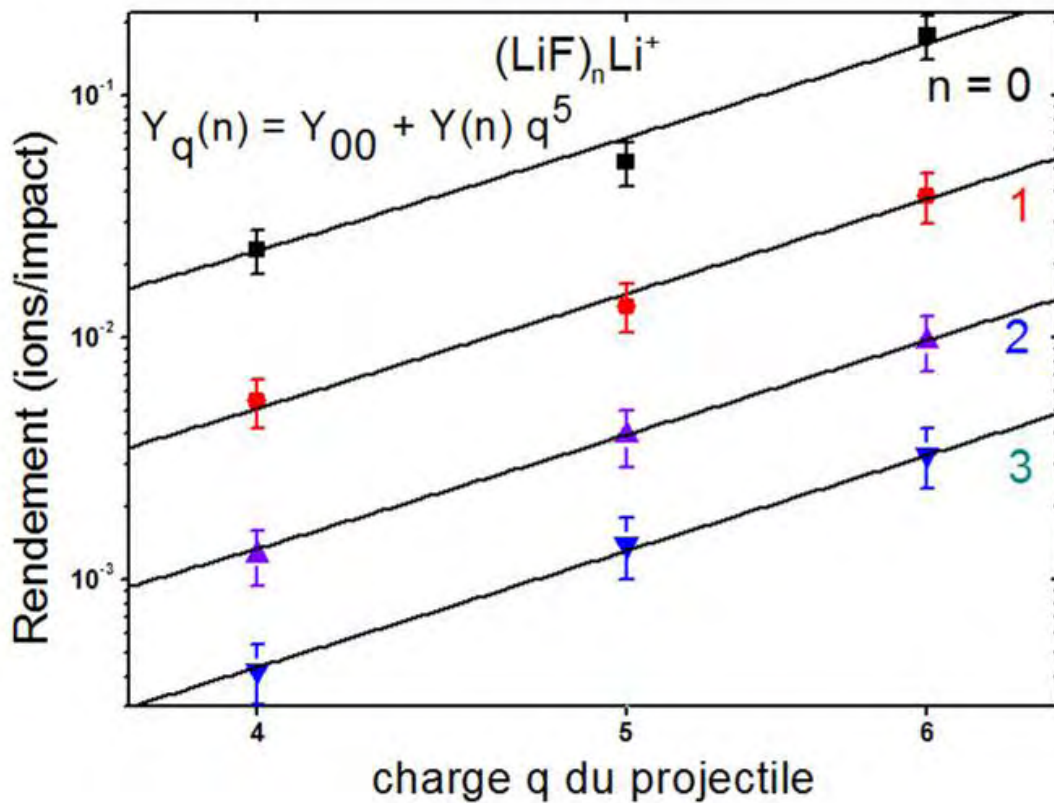


Figure V-11 : Rendement $Y(q)$ pour la série d'agrégats $(LiF)_nLi^+$ en fonction de l'état de charge q du faisceau N^{q+} .

Les résultats expérimentaux montrent également que cette augmentation se produit proportionnellement à l'ensemble de la série d'agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$.

Empiriquement, toutes les données correspondant aux mesures effectuées pour tous les agrégats, peuvent être décrites par la relation : $Y_q(n) \sim q^5$ (équation V-5).

Le pouvoir d'arrêt électronique a été calculé pour chaque état de charge q , en utilisant le code CASP 4.1 (annexe 5) qui a été développé par G. Schiwietz et P. Grande [CASP 4.1]. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure V-12 et montrent que le pouvoir d'arrêt électronique S_e est proportionnel à $q^{1.7}$ (à ~ 0.1 MeV/u).

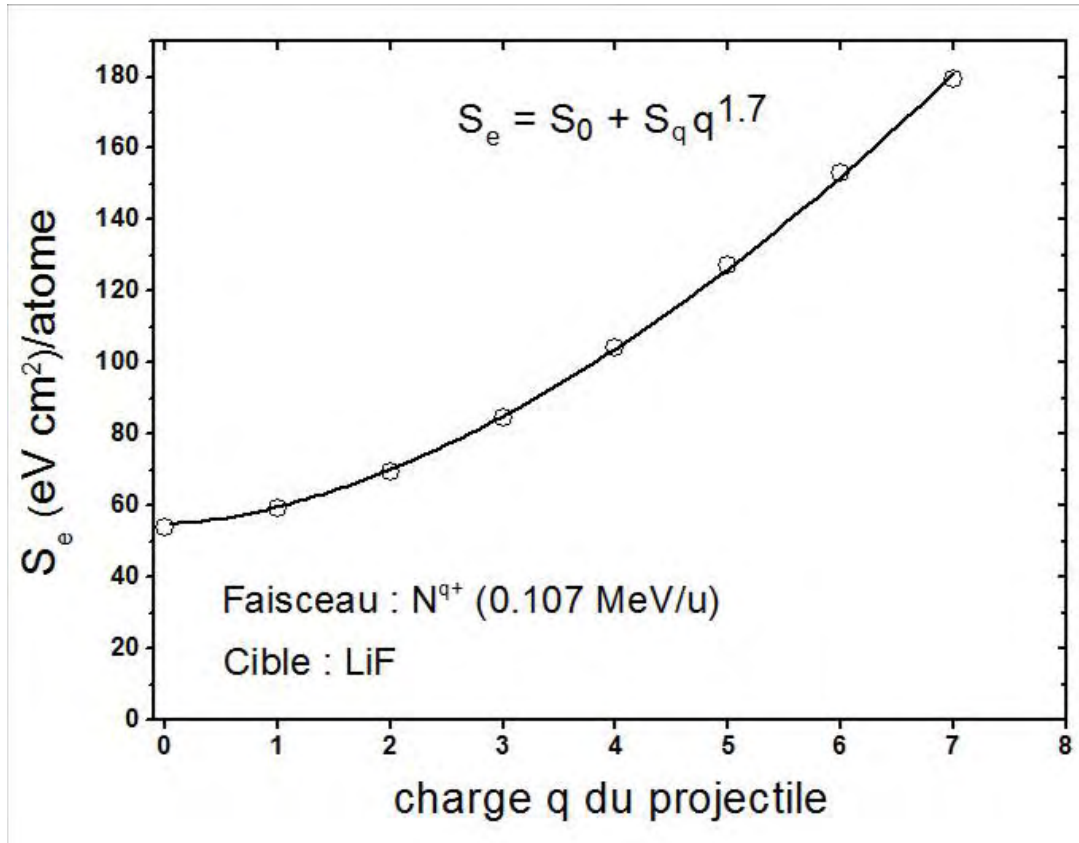


Figure V-12 : S_e en fonction de la charge q du faisceau N^{q+} , calculés avec le programme CASP4.1.

Les données expérimentales des rendements des agrégats (figure V-11) peuvent donc être décrites par une loi en $Y \sim S_e^3$. Ceci correspond à la prédiction du modèle collectif "onde de choc par pression" pour la pulvérisation [Hijazi 2011] (voir chapitre 2 § B-II.3).

Il est intéressant de préciser que les expériences au GANIL ont été réalisées avec différents projectiles de vitesse moyenne environ 10 MeV/u et de charges q très proches de la charge d'équilibre. Les résultats obtenus montrent que le rendement Y des ions secondaires est proportionnel à S_e^2 (pour les pouvoirs d'arrêt électroniques entre 1.9 et 8.3 keV/nm). Au VDG, les expériences ont été faites avec le même projectile N de vitesse constante 0.1 MeV/u pour différents états de charge q (avec $S_e \approx 1$ keV/nm et $S_n \approx 0.007$ keV/nm). Le rendement Y des ions secondaires dans ce dernier cas est proportionnel à S_e^3 .

V.6 Rendement en fonction de l'angle d'incidence δ : $Y=f(\delta)$

Dans le paragraphe précédent, nous avons vu que les rendements de pulvérisation pour les ions secondaires positifs et pour les neutres émis en fonction du pouvoir d'arrêt électronique sont complètement différents. Nous allons maintenant nous intéresser à l'évolution de ces rendements en fonction de l'angle d'incidence du projectile. La figure V-13 représente donc l'évolution des rendements Y du monomère Li^+ en fonction de l'angle d'incidence δ , pour le système de collision Xe^{44+} (7.7 MeV/u) sur LiF monocristallin (δ représente l'angle d'incidence du projectile par rapport à la normale de la surface de la cible).

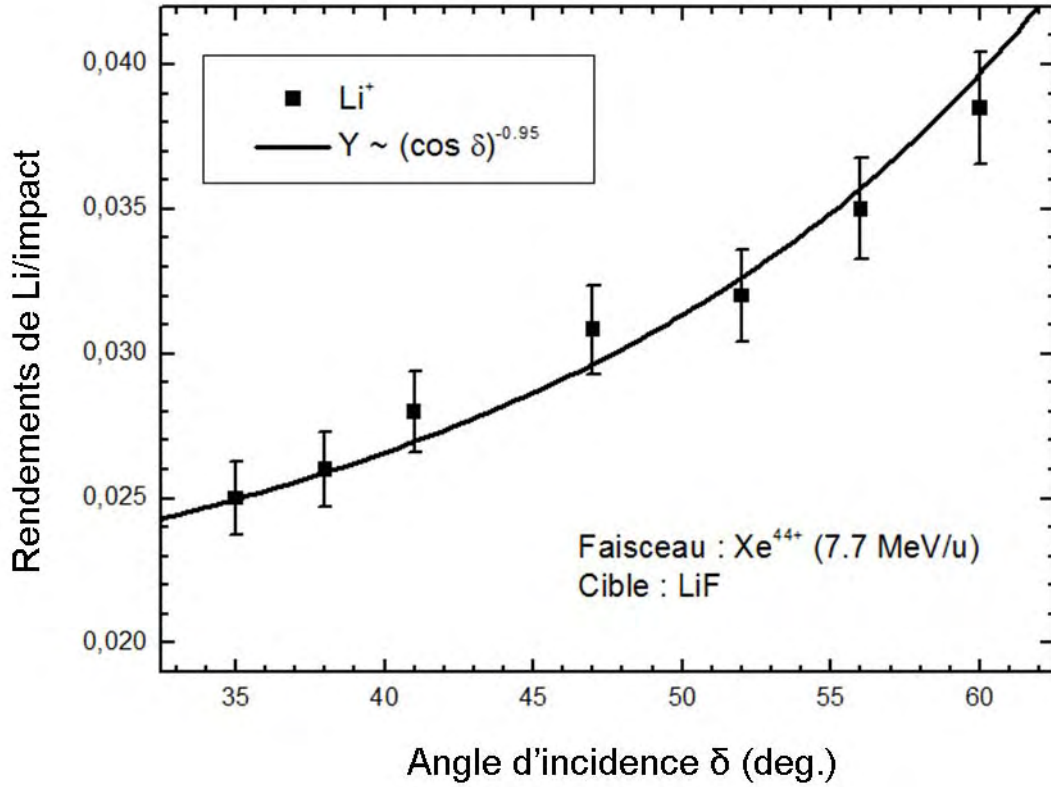


Figure V-13 : Rendement de pulvérisation Y du Li^+ en fonction de l'angle d'incidence δ pour le système de collision Xe^{44+} (7.7 MeV/u) sur LiF monocristallin.

Le rendement Y du Li^+ augmente avec l'angle d'incidence δ (figure V-13). Il varie selon :

$$Y(\delta) = Y(\delta = 0) \times (\cos \delta)^{-x} \quad (\text{V-6})$$

Où $x \approx 0.95$, tandis que pour les neutres la valeur de x est égale à 1.7 (chapitre 2 figure II-15). Il s'agit donc d'une deuxième différence sur le comportement de l'émission entre ions et neutres.

L'évolution de $Y(\delta)$ en $1/(\cos \delta)^{0.95}$ (figure V-13) est compatible avec le modèle de l'onde de choc [Bitensky 1987] (chapitre 2 paragraphe II.5.b) qui prédit $1/(\cos \delta)^x$ avec $x \approx 1$.

Phénoménologiquement, on peut comprendre cet effet en considérant que lorsqu'un ion projectile pénètre dans le matériau avec une incidence différente de la normale, il parcourt une distance plus grande sous la surface, dans la zone d'échappement des ions secondaires. L'augmentation du dépôt d'énergie dans la profondeur d'échappement augmente la quantité des ions secondaires émis (voir aussi chapitre 6, figure VI-9). Ainsi, si la profondeur d'échappement

est constante et la distribution initiale isotrope, la distribution $Y(\delta)$ est alors proportionnelle à $(\cos \delta)^{-1}$.

Bien que le modèle de l'onde de choc explique, d'une part, cette évolution, et d'autre part, l'évolution des distributions des rendements de la série d'agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n des agrégats $Y(n)$, l'évolution des rendements de pulvérisation en fonction du pouvoir d'arrêt électronique $Y(S_e)$ reste en désaccord avec les prédictions de ce modèle qui prédit $Y \sim S_e^{3/2}$ (chapitre 2 § B-II.3).

Chapitre 6 : Distributions en énergie et en angle des ions secondaires

Introduction

Dans ce chapitre nous étudions les distributions en énergie et en angle des ions secondaires. A partir des positions X et Y et du temps de vol TOF nous pouvons déterminer :

1. Les composantes du vecteur vitesse initiale pour tous les ions secondaires (sélectionnés en masse).
2. Les rendements différentiels en énergie et en angle.

Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons des spectres bidimensionnels des positions en fonction du temps de vol. Dans la deuxième partie, nous étudions et comparons l'évolution des distributions en énergie des ions secondaires (monomère ${}^7\text{Li}^+$ et agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$) en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S_e et de l'angle d'incidence δ . Nous développons ensuite un modèle théorique de l'explosion coulombienne. Nous appliquons ce modèle à nos résultats expérimentaux, et nous le comparons à d'autres modèles théoriques existants (exemple : la pointe thermique) sur les distributions en énergie des ions secondaires. Dans la troisième partie, nous présentons les distributions angulaires des ions secondaires (monomère/agrégats). Nous terminons cette partie en comparant les distributions angulaires des ions secondaires avec celles des neutres [Toulemonde 2003, Toulemonde 2002].

VI.1 Imagerie : détermination des positions X et Y en fonction du temps de vol TOF

VI.1.1 Etude de la position Y en fonction du temps de vol : $Y=f(\text{TOF})$

Au cours des chapitres 4 et 5, nous avons déterminé et étudié les distributions concernant la partie temps de vol (spectres des masses et rendements de production des ions secondaires). Nous allons maintenant étudier les spectres associés à la partie d'imagerie du détecteur afin de pouvoir déterminer les distributions en énergie et en angle pour chaque ion émis. La géométrie de l'incidence et le choix des axes du repère (0, X, Y, Z) sont montrés sur la figure VI-1. Il est à noter que le faisceau arrive sur la cible depuis les valeurs négatives de position Y.

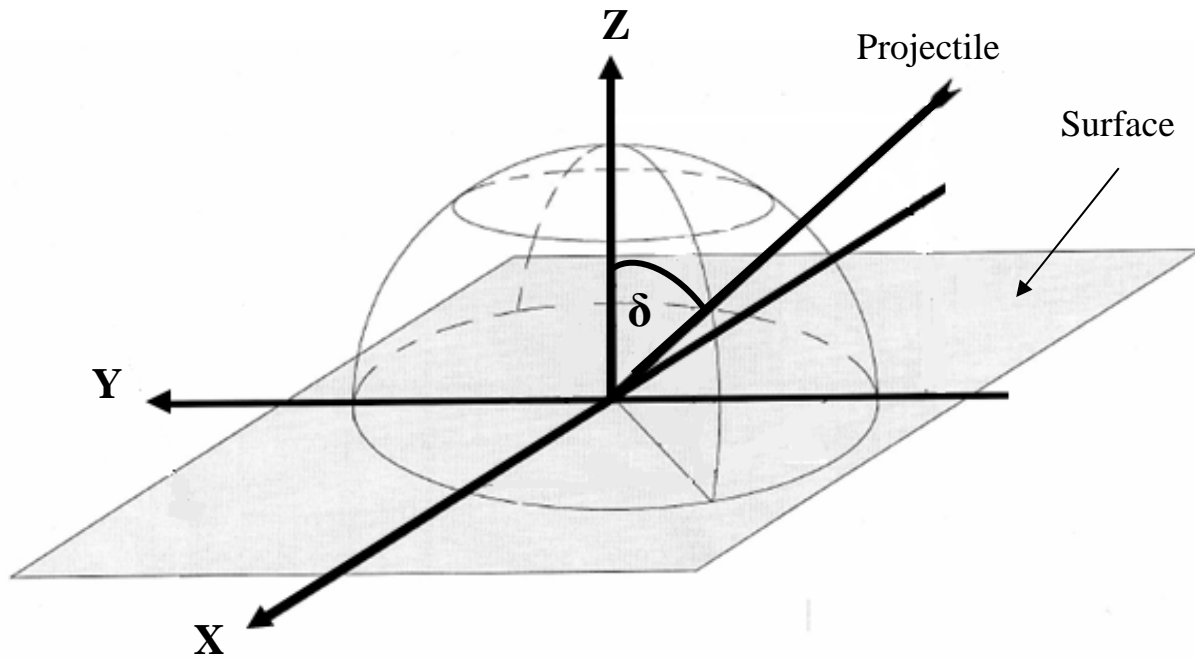


Figure VI-1 : Plan d'incidence du faisceau avec la surface de la cible en 3 dimensions.

Les figures VI-2(a-c) montrent des exemples de spectres bidimensionnels représentant la position de l'ion détecté suivant la direction Y en fonction du temps de vol TOF, pour les systèmes de collisions (a) Ca^{18+} (7.6 MeV/u) sur LiF (monocristallin), (b) de Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF (monocristallin) et (c) Xe^{44+} (7.7 MeV/u) sur LiF (monocristallin). L'angle d'incidence du faisceau est de $\delta = 35^\circ$ (figure VI-1) par rapport à la normale de la surface.

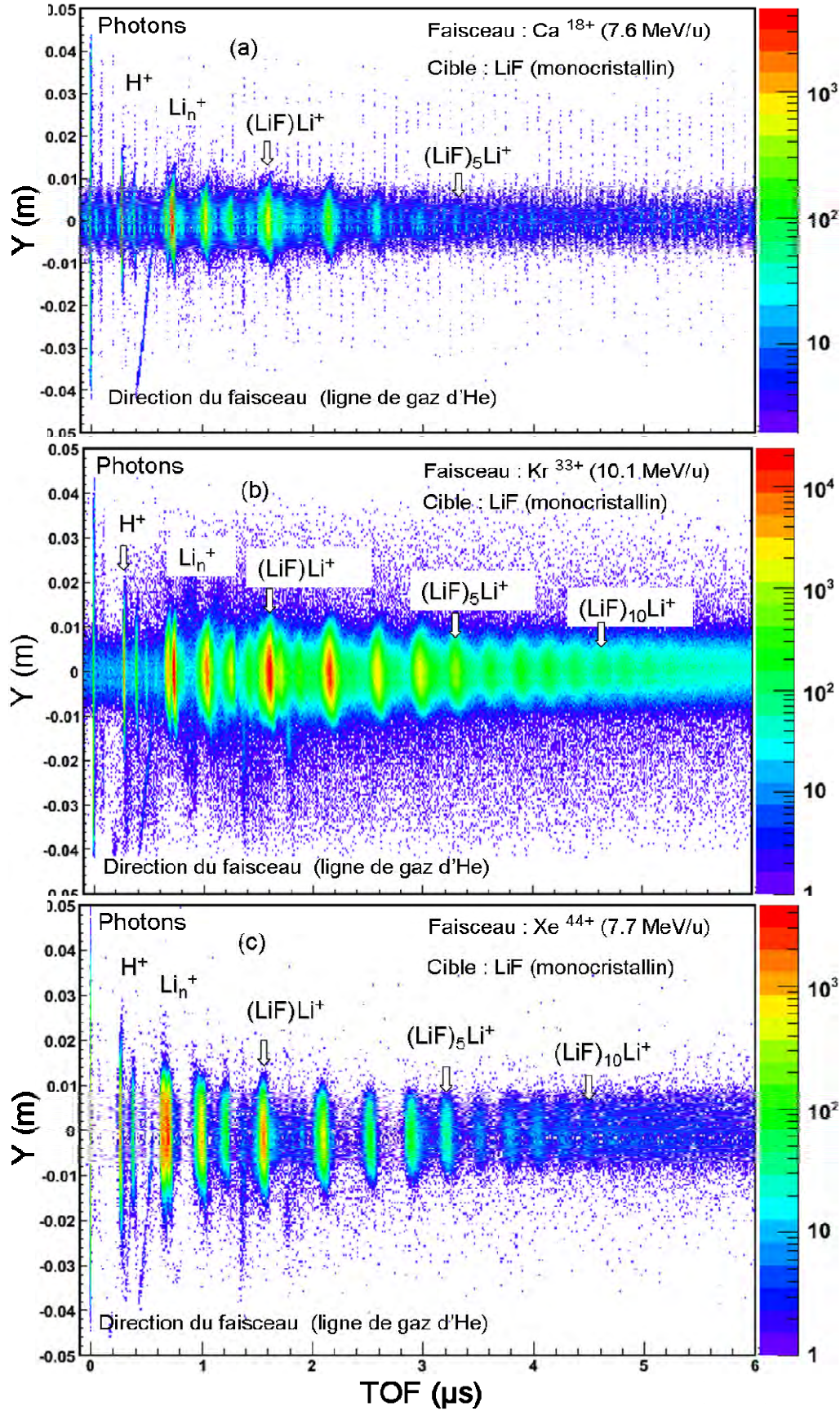


Figure VI-2 : Position Y de l'ion émis de LiF en fonction du TOF pour différents projectiles :
 (a) Ca^{18+} (7.6 MeV/u), (b) Kr^{33+} (10.1 MeV/u) et (c) Xe^{44+} (7.7 MeV/u).

Sur tous les spectres, nous observons le pic associé aux photons. Il correspond à l'origine t_0 des temps de vol des spectres. Le photon n'étant pas sensible aux champs de l'extraction, le pic "photon" couvre toute la largeur du détecteur (86 mm). Outre les pics H^+ , H_2^+ , H_3^+ nous observons les pics associés au LiF : Li_n^+ (n compris entre 1 et 3) et la série d'agrégats $(LiF)_nLi^+$.

La ligne oblique présente entre les pics de l'hydrogène et le pic du monomère Li^+ correspond à la ligne de gaz. Cette dernière permet la calibration des systèmes de mesures en temps de vol TOF et en positions XY, ainsi que la vérification des paramètres δ , d_1 , d_2 , U_1 et U_2 (voir chapitre 3). Dans le cas présent, on vérifie bien que le faisceau arrive sur la cible à partir des Y négatifs.

VI.1.2 Etude de la position X en fonction du temps de vol : $X=f(TOF)$

La figure VI-3 montre un exemple de spectres bidimensionnels représentant la position X en fonction du temps de vol TOF, pour le système de collision Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF (monocristallin). Comme précédemment, nous retrouvons les pics associés à H^+ , Li^+ et les séries d'agrégats Li_n^+ et $(LiF)_nLi^+$.

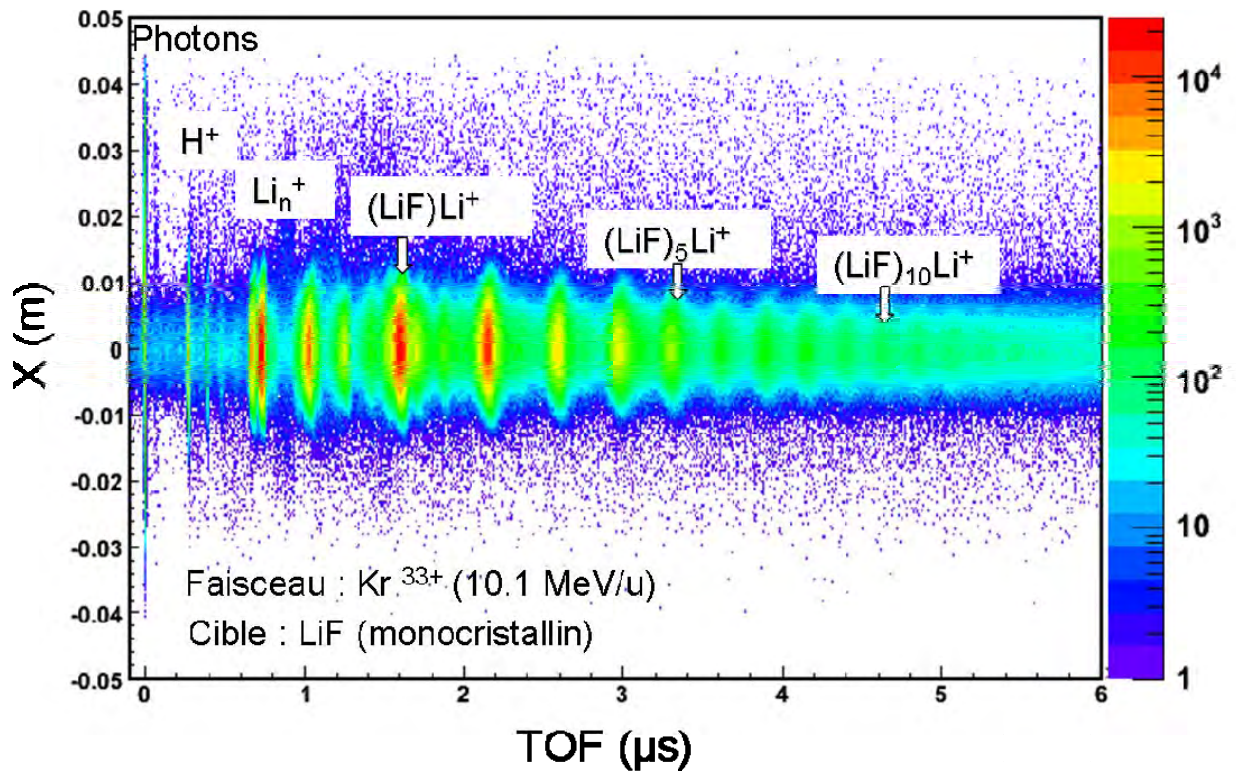


Figure VI-3 : Position X en fonction du TOF pour les systèmes de collision Kr^{33+} sur LiF.

Les quatre figures ci-dessous VI-4(a-d) représentent des “zooms” des figures VI-2b (Y-TOF) et VI-3 (X-TOF). La région des “petites masses” (a et c) est montrée à gauche et la région des “masses importantes” (b et d) est montrée à droite. Sur ces figures, nous observons clairement les deux isotopes du Li, ${}^6\text{Li}^+$ et ${}^7\text{Li}^+$ (VI-4a). Les deux pics associés sont bien séparés. Pour les agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ ($n \geq 1$), les deux pics (${}^6\text{Li}^+$ et ${}^7\text{Li}^+$) sont confondus (par exemple : pour $n = 1$, il existe trois possibilités de masses mélangées 31, 32 et 33 u). Il est néanmoins possible de les séparer avec un échantillon élaboré avec du LiF enrichi en ${}^7\text{Li}$. Il est aussi intéressant de noter que la tension d'extraction est suffisamment forte pour que l'on puisse séparer les masses, et suffisamment faible pour qu'on puisse déterminer la distribution en énergie pour le monomère. Pour les agrégats, nous supposons qu'ils sont essentiellement composés de l'isotope ${}^7\text{Li}$. Les flèches montrent la ligne de gaz d'hélium dans la direction de Y (VI-4a) et sa projection dans la direction de X (VI-4c).

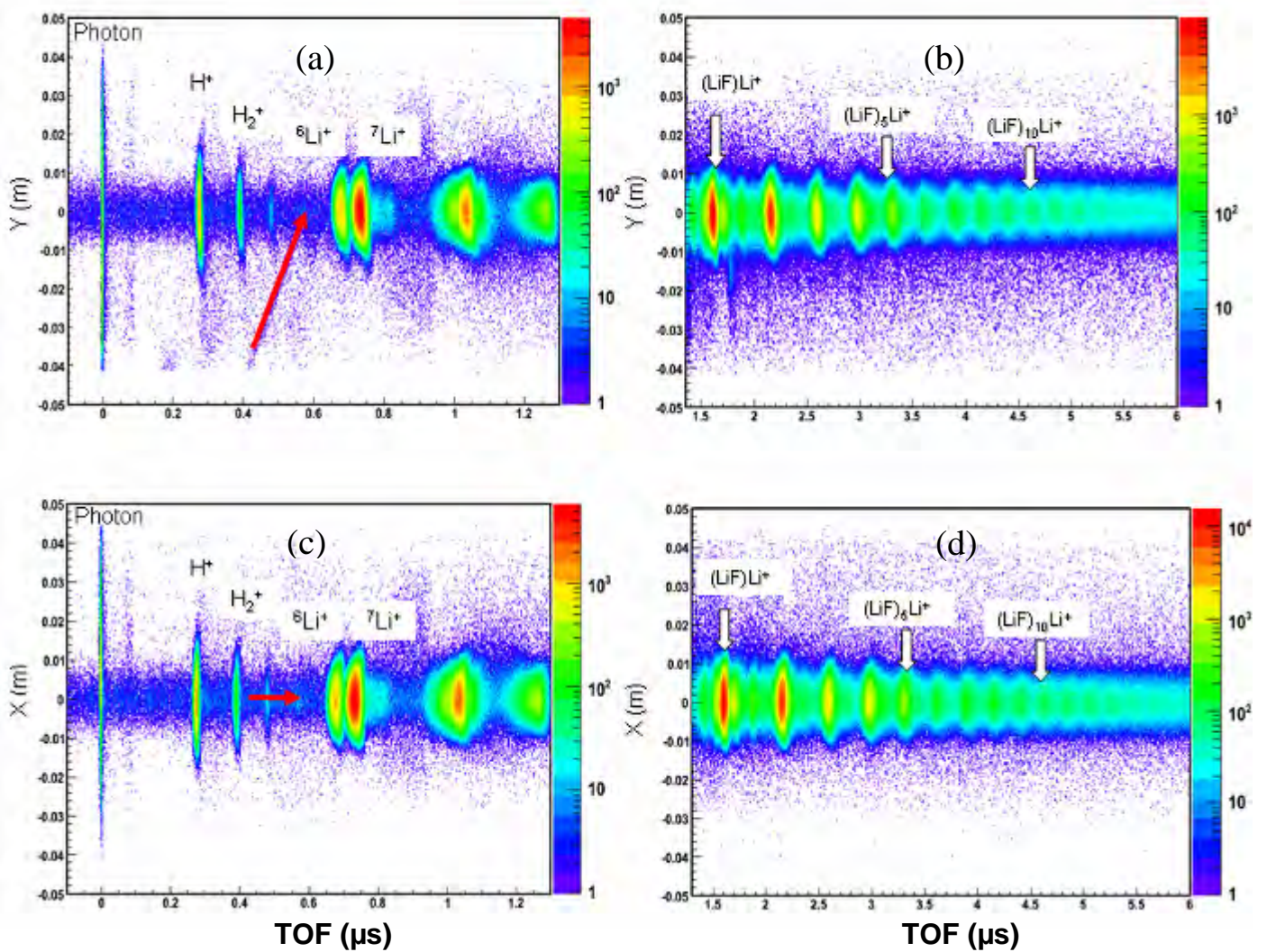


Figure VI-4 : (a) et (b) position Y en fonction du TOF ; (c) et (d) position X en fonction du TOF pour le système de collision Kr^{33+} sur LiF.

VI.2 Distributions en énergie

VI.2.1 Distribution en énergie du monomère ${}^7\text{Li}^+$ et du premier agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$

VI.2.1.a L'évolution des distributions en énergie en fonction de S_e

La figure VI-5 montre la distribution en énergie du monomère ${}^7\text{Li}^+$ émis du LiF (cristallin) pour différents projectiles : Ca^{18+} (7.6 MeV/u) (noir), Kr^{33+} (10.1 MeV/u) (rouge), Xe^{44+} (7.7 MeV/u) (vert) et Pb^{53+} (4.4 MeV/u) (bleu).

Au fur et à mesure que le dépôt d'énergie augmente, on observe que l'énergie du maximum E_{max} de $N(E)$ se décale de 3.1 ± 0.2 eV (dans le cas du Ca) à 21.0 ± 1.5 eV (dans le cas du Pb).

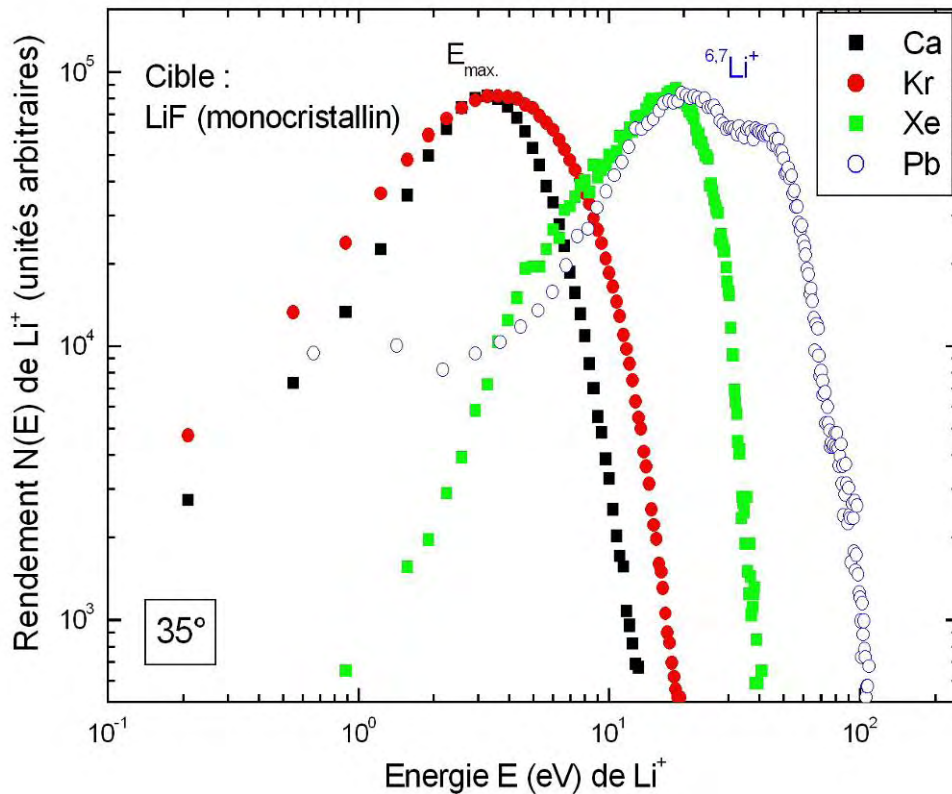


Figure VI-5 : Evolution de la distribution en énergie du ${}^7\text{Li}^+$ en fonction du pouvoir d'arrêt.

Nous observons que la distribution en énergie, dans le cas du Pb, s'élargit. Dans les mêmes conditions d'extraction pour les faisceaux plus lourds, les masses 6 et 7 ne sont plus complètement séparées. Ceci implique l'observation d'un petit épaulement ($\approx 7\%$) dans la distribution associée au ${}^6\text{Li}^+$ pour un projectile Pb (courbe bleue, figure VI-5).

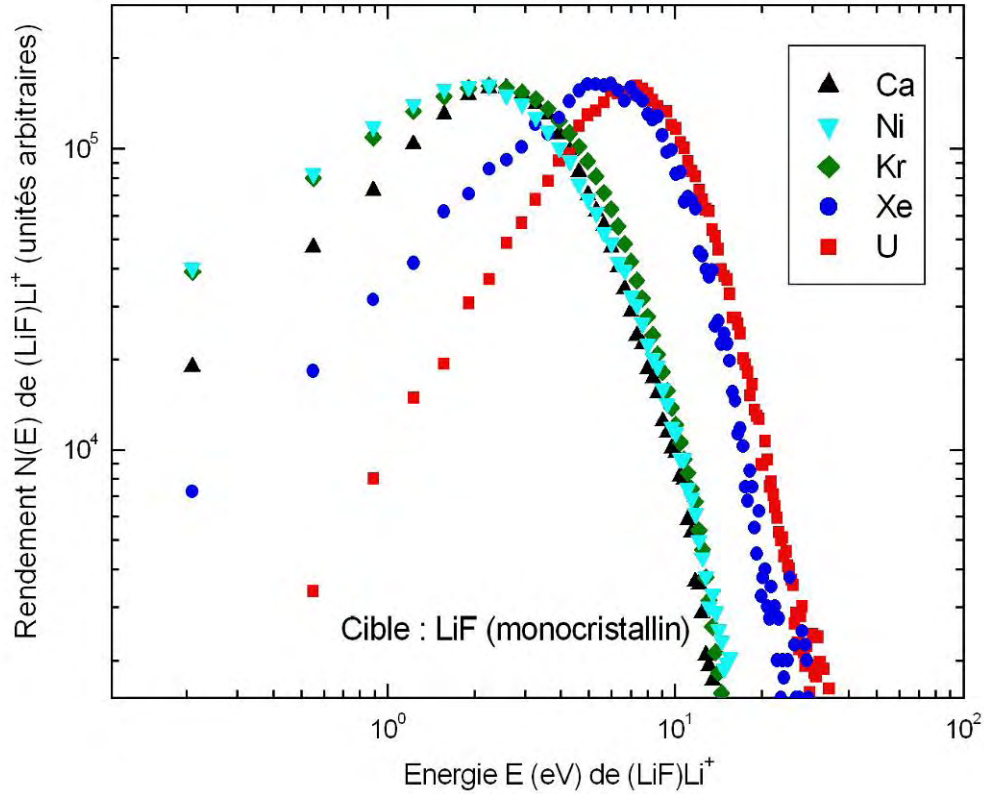


Figure VI-6 : Evolution de la distribution en énergie du $(\text{LiF})\text{Li}^+$ en fonction du pouvoir d'arrêt électronique.

Nous observons le même comportement pour le premier agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$ (figure VI-6), pour différents projectiles (Ca, Ni, Kr, Xe et U). Du calcium à l'uranium, l'énergie E_{max} augmente de 2.25 ± 0.2 eV à 6.67 ± 0.5 eV.

Les deux figures en dessous (VI-7a et b) résument l'évolution de l'énergie du maximum E_{max} et de l'énergie moyenne $\langle E \rangle$ de $(\text{LiF})\text{Li}^+$ en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S_e .

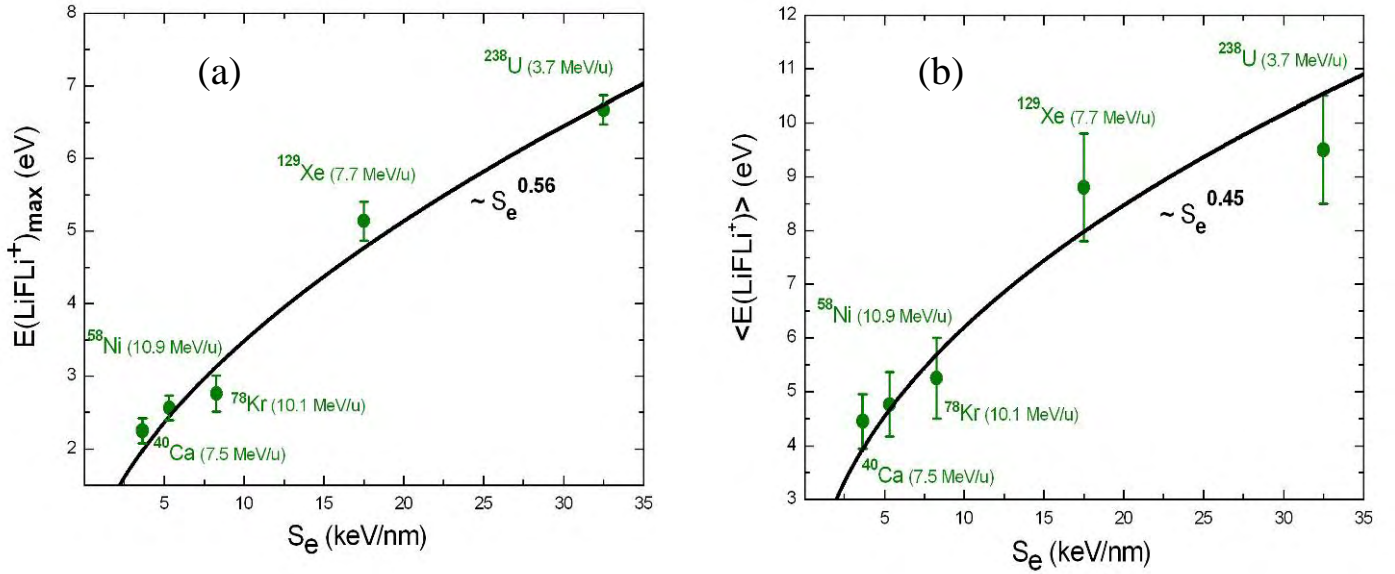


Figure VI-7 : Evolution de E_{max} et de $\langle E \rangle$ du $(\text{LiF})\text{Li}^+$ en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S_e .

Les figures VI-7 montrent bien que l'énergie E_{max} et l'énergie moyenne $\langle E \rangle$ du $(\text{LiF})\text{Li}^+$ augmentent avec, à peu près, la racine carrée du pouvoir d'arrêt électronique S_e ($\sim S_e^{0.5}$).

De l'observation des figures VI-5, 6 et 7 nous pouvons en déduire : un faible élargissement des distributions en énergie, et un fort décalage des distributions vers les hautes énergies en fonction de la perte d'énergie électronique du projectile.

La nature des distributions en énergie sera évoquée dans le paragraphe (§VI.2.2). Nous distinguerons deux régimes différents :

- 1- Pour les faibles perturbations (faibles pouvoirs d'arrêt électronique⁸), nous pouvons approximer les distributions en énergie par une distribution de Maxwell-Boltzmann.
- 2- Pour les fortes perturbations (forts pouvoirs d'arrêt électronique⁹), nous ne pouvons plus approximer les distributions en énergie par une distribution de Maxwell-Boltzmann. Il est possible d'ajuster ces distributions par une distribution de Maxwell-Boltzmann "modifiée"¹⁰.

⁸ Inférieur ou égal à celui de Kr ($S_e \leq 8.27$ keV/nm).

⁹ Supérieur à celui de Kr ($S_e > 8.27$ keV/nm).

¹⁰ $N(E) = AE^\alpha \exp(-\beta E)$

VI.2.1.b L'évolution de distribution en énergie en fonction de δ

Dans le chapitre 5 paragraphe V.6, nous avons mis en évidence le fait que le rendement total des ions secondaires augmente en fonction de l'angle d'incidence δ . Maintenant, nous allons voir comment la distribution en énergie des ions secondaires évolue en fonction de δ . La figure VI-8 montre l'évolution de la distribution en énergie du ${}^7\text{Li}^+$ émis du LiF par du Xe^{44+} (7.7 MeV/u), pour l'angle d'incidence $\delta = 35^\circ$, 43° et 56° .

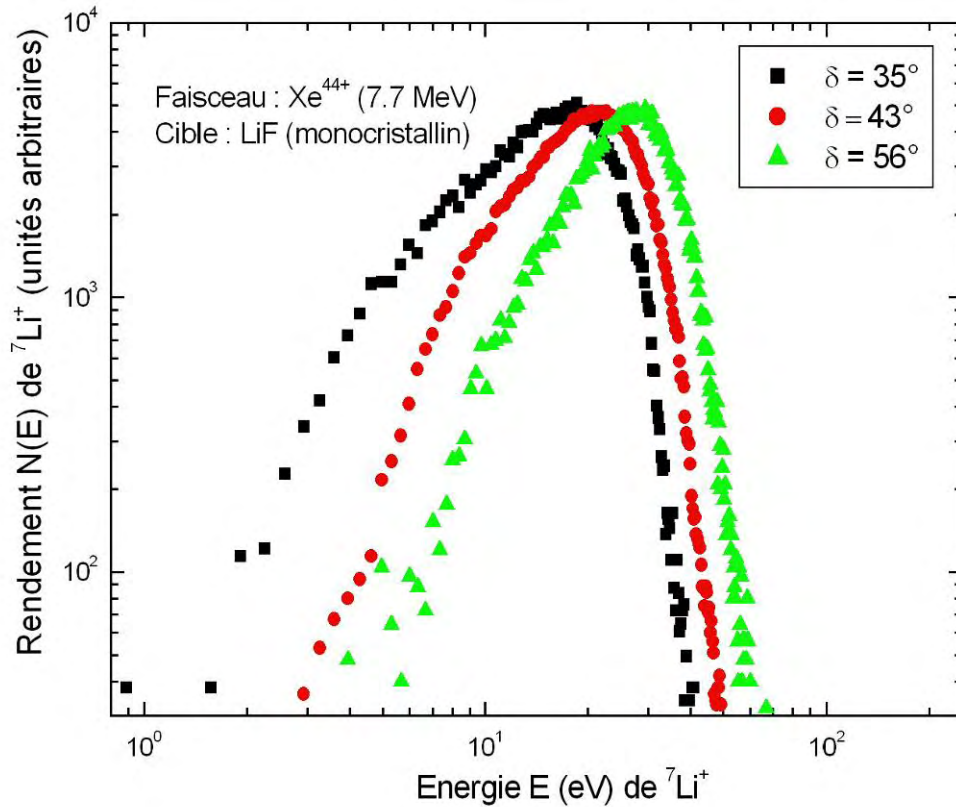


Figure VI-8 : Evolution de la distribution en énergie du ${}^7\text{Li}^+$ en fonction de l'angle d'incidence δ .

Nous remarquons que l'énergie du maximum de la distribution pour le ${}^7\text{Li}^+$ augmente en fonction de l'angle d'incidence. De 35° à 56° , elle augmente de 18 eV à 28 eV. Une telle dépendance de la distribution en énergie en fonction de l'angle d'incidence a déjà été observée pour un échantillon de BeO irradié avec d'or de 1.8 MeV/u [Czerski 2004].

De la figure VI-8, nous pouvons observer que la forme de la distribution est quasiment constante.

Une explication possible pour la dépendance de l'angle d'incidence est présentée sur la figure VI-9. Le potentiel positif de la trace est plus important dans le cas de l'incidence rasante. (figure VI-9). Si l'on considère que certains électrons ne sont pas piégés dans le voisinage de la surface, il pourrait y avoir une exaltation d'un facteur 3 à 4 entre l'incidence normale et l'incidence rasante. Cela signifie que le décalage mesuré en fonction de l'angle d'incidence est complètement cohérent avec l'accélération par le potentiel de trace nucléaire, si celui-ci est à l'origine de ce phénomène. Nos résultats montrent que les rendements totaux augmentent environ d'un 2 pour un angle d'incidence δ variant de 35° à 60° (chapitre 5, §V.6).

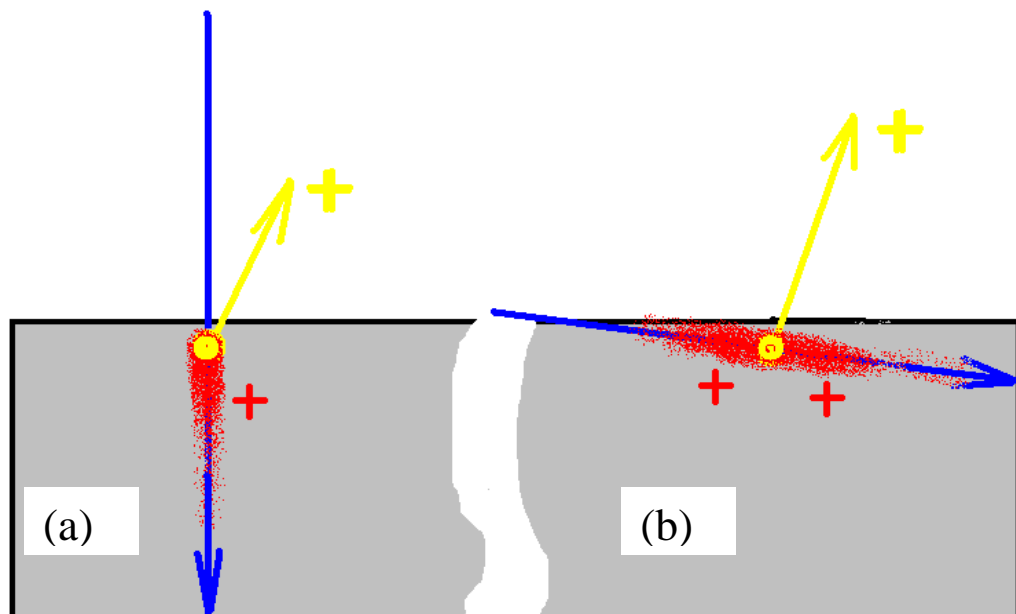


Figure VI-9 : Potentiel de trace avec (a) une incidence normale et (b) une incidence rasante.

VI.2.2 Comparaison des distributions entre ${}^7\text{Li}^+$ et $(\text{LiF})\text{Li}^+$

La figure VI-10 montre une comparaison de la distribution en énergie entre le monomère ${}^7\text{Li}^+$ (cercles noirs) et le premier agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$ (losanges rouges) pour un angle d'incidence du projectile de 35° par rapport à la normale de la surface. Les deux distributions sont normalisées au même maximum.

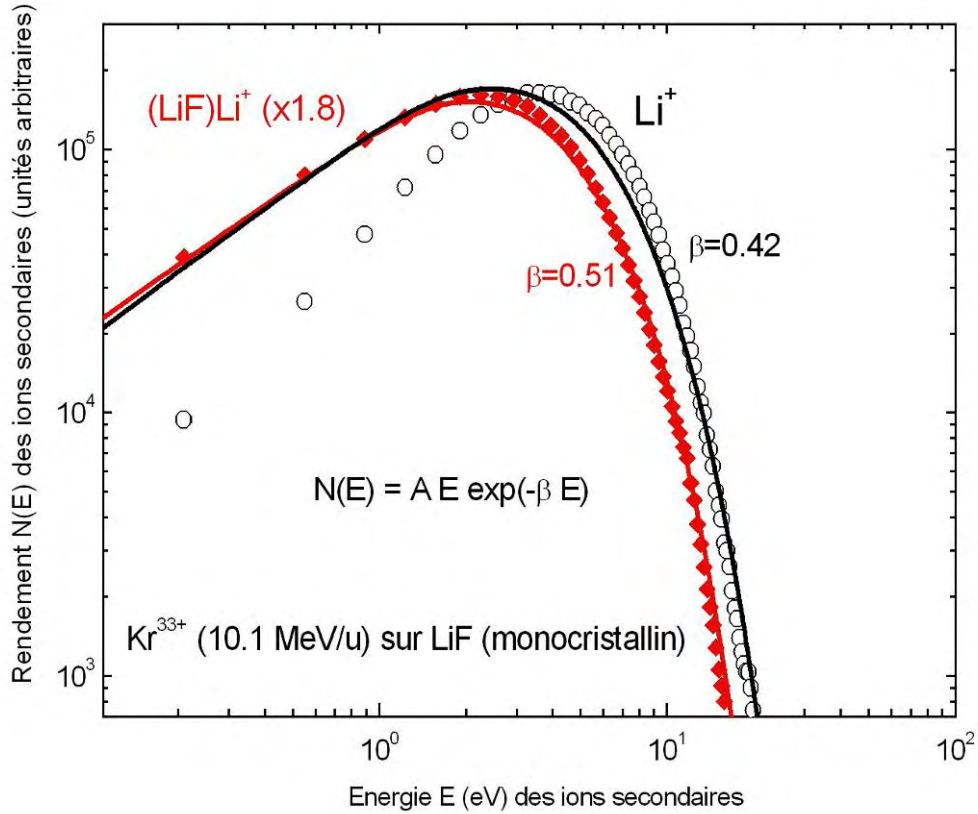


Figure VI-10 : Distribution en énergie du ${}^7\text{Li}^+$ pour un système de collision Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF (monocristallin).

Sur la figure VI-10 on remarque que les distributions associées au monomère ${}^7\text{Li}^+$ et à l'agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$ peuvent être représentées par une seule et même fonction (avec un paramètre β différent). Cependant, la distribution du monomère est plus décalée vers les hautes énergies. Cette distribution a un maximum à 4 ± 0.25 eV. Il est de 2.7 ± 0.2 eV pour l'agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$. L'explication possible est la suivante : Nous pouvons imaginer que le monomère ${}^7\text{Li}^+$ et l'agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$ ne sont pas éjectés de la même zone autour de la trajectoire du projectile [Hijazi 2011]. Par exemple : le ${}^7\text{Li}^+$ provient de la zone du cœur de trace (zone créée par

l'ionisation primaire du projectile) et le $(\text{LiF})\text{Li}^+$ est émis dans un halo (zone créée par les électrons secondaires) [Della-Negra 1990, Iza 2005].

La distribution en énergie de l'agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$ éjecté peut être bien approximée par une distribution de type Maxwell-Boltzmann $N(E) = AE \exp(-\beta E)$ (paragraphe suivant). Cependant, cette dernière présente un léger désaccord à basse énergie ($E < 2$ eV) pour la distribution en énergie du monomère ${}^7\text{Li}^+$.

Nous allons maintenant nous intéresser à l'évolution de la distribution en énergie en fonction de la taille de l'agrégat ($n = 1, 2, 3$ et 7). Sur les figures VI-11a et b sont présentées les distributions pour les agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$; $n = 1, 2$ et 3 (figure VI-11a) et $n = 1, 3$ et 7 (figure VI-11b), pour le même système de collision Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF monocristallin. Les distributions sont normalisées au même maximum.

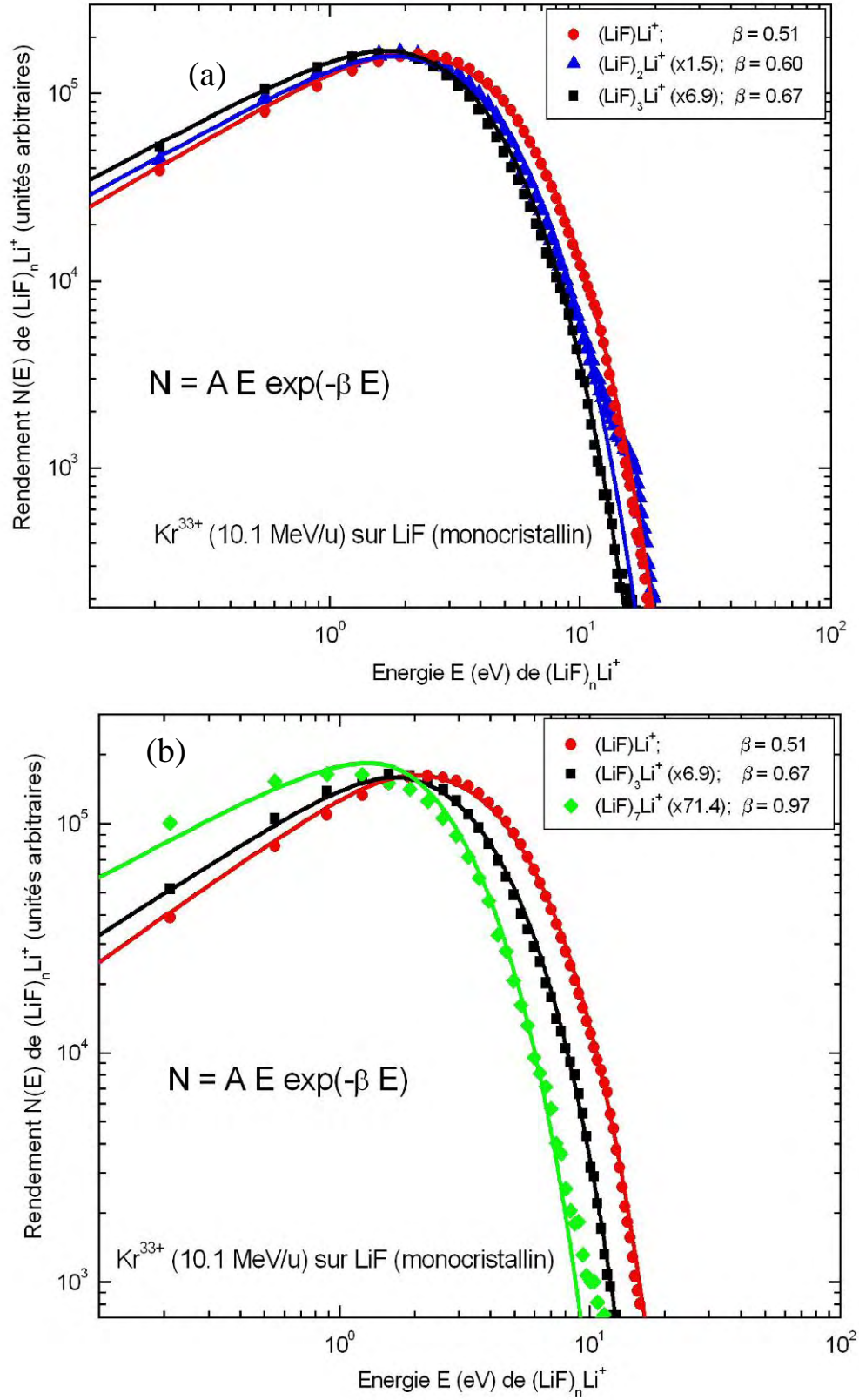


Figure VI-11 : Distribution en énergie des agrégats $(\text{LiF})_n \text{Li}^+$ pour un système de collision Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF (monocristallin).

Nous observons que :

- la forme des distributions est relativement constante. Elle ne dépend pas de la taille de l'agrégat.
- les distributions en énergie pour ces gros agrégats se décalent vers les basses énergies, de 2.7 eV pour (LiF)Li⁺, à 1.3 eV pour (LiF)₇Li⁺.

Dans le cas présent (Kr), régime de faibles perturbations, les distributions en énergies du monomère ⁷Li⁺ et des agrégats (LiF)_nLi⁺ peuvent être approximées par une distribution de Maxwell-Boltzmann $N(E) = AE \exp(-\beta E)$ [Thompson 1987, Husinsky 1979, Kelly 1979, Szymoński 1978, Overeijnder 1978, Eldridge 1927].

A est l'amplitude de la distribution, $\beta = \frac{1}{k_B T}$ et k_B la constante de Maxwell-Boltzmann ($k_B \approx 8.617 \times 10^{-5} \text{ eV} \times \text{K}^{-1}$).

Husinsky et collaborateurs [Husinsky 1979] ont montré que la distribution en énergie des atomes Na pulvérisés de NaCl par des ions Xe⁺ (20 keV, régime de pulvérisation nucléaire) pouvait être reproduite par une distribution de Maxwell-Boltzmann. La température calculée à partir de la distribution de Maxwell-Boltzmann est très basse et correspond à la température ambiante. Ces auteurs ont également montré que la distribution en énergie pour les hautes énergies des atomes Na (> 0.01 eV) pouvait être reproduite par une fonction $AE^{1/2} \exp(-\beta E)$. Des calculs ont été réalisés par R. Kelly et al. [Kelly 1979] pour la distribution en énergie dans le cadre des effets thermique en pulvérisation. Ces calculs ont montré que les distributions des atomes pulvérisés suivent une distribution de type $AE^\alpha \exp(-\beta E)$, avec $\alpha = 1/2$ et 1 [Szymoński 1978, Overeijnder 1978].

Dans le régime de pointe (chapitre 2 § B-I.3), les distributions en énergie ont été approximées par une distribution de Maxwell-Boltzmann, $N(E) = AE \exp(-\beta E)$ [Thompson 1987]. Cette approximation est valable lorsque tous les atomes dans la zone perturbée (la pointe) peuvent atteindre un équilibre thermodynamique.

Dans le modèle de pulvérisation par évaporation thermique, il faut tenir compte de l'équilibre thermique local. Dans ce modèle, les calculs du taux d'évaporation local ϕ et du rendement total Y sont aussi basés sur la loi de Maxwell-Boltzmann (chapitre 2 § B-II.1).

J. Lenoir et J.A.M. Pereira [Lenoir 2007, Pereira 1997] ont montré que la distribution en énergie du ${}^7\text{Li}^+$ pouvait être approximée par une distribution de Maxwell-Boltzmann "modifiée" de type $N(E) = AE^\alpha \exp(-\beta E)$, α est d'environ 1. R. Macfarlane et al. [Macfarlane 1986] avait aussi montré que la distribution en énergie d'ions H^+ émis d'une cible bombardée par de l'or peut être décrite par une distribution de Maxwell-Boltzmann "modifiée". Cette fonction avait été utilisée par plusieurs auteurs K. Wien, A.R. Ziv, S.H. Lin [Wien 1995, Ziv 1983, Lin 1983]. Le facteur E^α avec $\alpha \neq 1$ ne fait pas partie de la distribution de Maxwell-Boltzmann. Dans toutes les publications précédemment citées [Macfarlane 1986, Lenoir 2007, Pereira 1997...], la signification du facteur E^α avec $\alpha \neq 1$ n'est pas clairement expliquée. Néanmoins, il paraît raisonnable que la distribution initiale en énergie puisse être modifiée soit par l'effet du potentiel que doit vaincre l'ion secondaire pour traverser la surface soit par l'effet du potentiel répulsif du cœur de la trace générée par le projectile [Schiwietz 1996, Iza 2005, Della-Negra 1990] (§ VI.2.1.b) (figure VI-10).

L'approximation par une distribution de type Maxwell-Boltzmann indique que le processus générant la pulvérisation doit être principalement d'origine thermique. Le passage de l'ion de la cible doit générer une zone excitée, chaude, comparable à un plasma [Costa 1927, Eldridge 1927]. Les températures des ions secondaires déduites à partir de l'approximation de Maxwell-Boltzmann sont les suivantes :

$$\begin{aligned} T(\text{Li}^+) &\approx (26 \pm 1.5) \times 10^3 \text{ K} \\ T((\text{LiF})\text{Li}^+) &\approx (22 \pm 1.5) \times 10^3 \text{ K} \\ T((\text{LiF})_2\text{Li}^+) &\approx (19 \pm 1.0) \times 10^3 \text{ K} \\ T((\text{LiF})_3\text{Li}^+) &\approx (17 \pm 1.0) \times 10^3 \text{ K} \\ T((\text{LiF})_7\text{Li}^+) &\approx (12 \pm 0.7) \times 10^3 \text{ K} \end{aligned}$$

Les températures obtenues sont bien supérieures à la température de sublimation du matériau étudié, $T_{\text{Sublimation}}(\text{LiF}) \approx 5400 \text{ K}$.

Ceci est en accord raisonnable avec les valeurs de la température de trace mesurées par la spectroscopie Auger à haute résolution [Staufenbiel 2005, Caron 2006]. Ces températures

varient typiquement de $T(\text{Auger}) \approx 2 \times 10^4 \text{ K}$ à $9 \times 10^4 \text{ K}$ selon le matériau étudié et la valeur de S_e . Par exemple, pour une cible de carbone amorphe (a-C) irradiée par un projectile de 9 MeV/u ($S_e \approx 3 \text{ keV/nm}$), une température de $T(\text{C}_{\text{KLL Auger}}) \approx 18 \times 10^3 \text{ K}$ a été trouvée au moment de la transition KLL Auger ($\approx 10 \text{ fs}$) [Caron 2006].

Nous allons maintenant comparer les distributions de Maxwell-Boltzmann dans le cas de différents projectiles de faibles et fortes perturbations (§VI.2.1.b). La figure VI-12 montre la distribution en énergie du $(\text{LiF})\text{Li}^+$ émis de LiF pour différents projectiles : 1) Ca^{18+} ($S_e = 3.3 \text{ keV/nm}$) (carrés noirs), Kr^{33+} ($S_e = 8.3 \text{ keV/nm}$) (cercles) et 3) U^{55+} ($S_e = 32.5 \text{ keV/nm}$) (carrés).

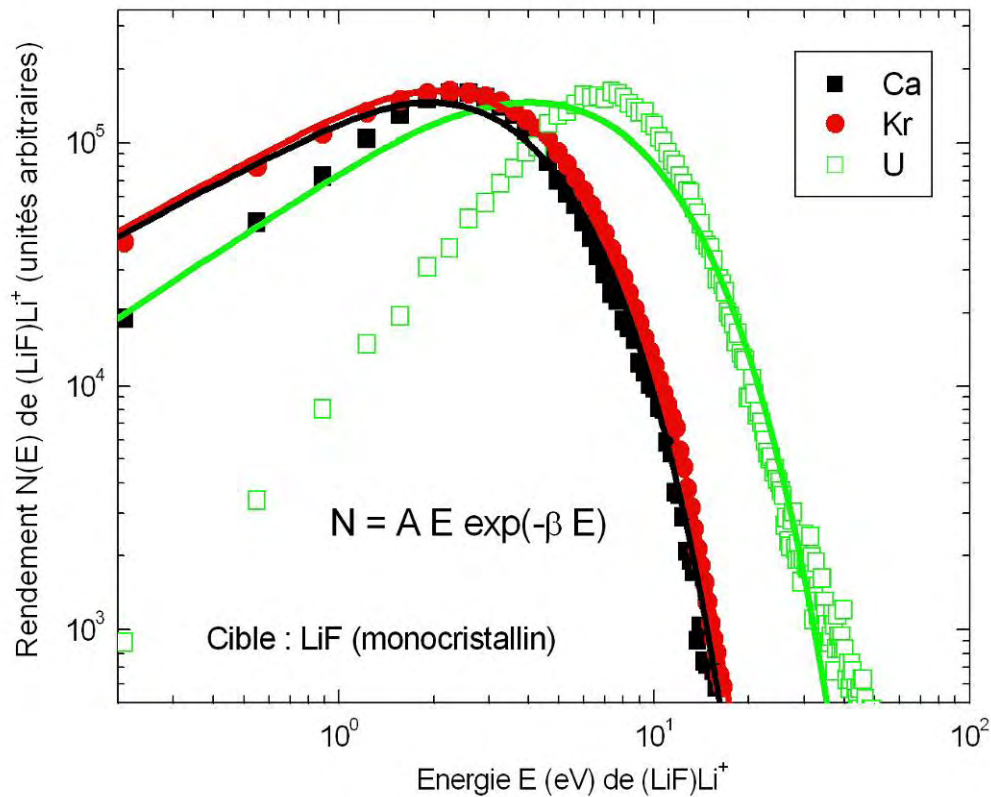


Figure VI-12 : Distribution en énergie d'agrégats $(\text{LiF})\text{Li}^+$ émis de LiF par : 1) Ca^{18+} (7.6 MeV/u) (carrés pleins), 2) Kr^{33+} (10.1 MeV/u) (ronds) et 3) U^{55+} (3.7 MeV/u) (carrés). Les distributions en énergie de $(\text{LiF})\text{Li}^+$ sont "ajustées" par une distribution de Maxwell-Boltzmann.

Nous observons que pour les faibles pouvoirs d'arrêt électronique, Ca et Kr, les distributions de $(\text{LiF})\text{Li}^+$ peuvent être décrites par une distribution de Maxwell-Boltzmann. Dans le cas d'un fort pouvoir d'arrêt électronique, U, la distribution de Maxwell-Boltzmann

$N(E) = AE \exp(-\beta E)$ ne peut pas reproduire la distribution de $(\text{LiF})\text{Li}^+$. Il existe notamment des écarts importants entre les deux distributions pour le domaine des basses énergies ($E < 5$ eV). Le maximum de la distribution n'est pas aussi bien reproduit. Il semblerait que dans le cas des très fortes perturbations, contrairement aux faibles perturbations en dessous de $S_e = 8.3$ keV/nm, une fonction de Maxwell-Boltzmann ne puisse plus décrire les distributions en énergie des ions secondaires. Nous observons clairement un effet de forte perturbation qui montre que nous sommes dans un régime transitoire au-delà d'un équilibre thermique local. Appliquons maintenant la distribution de Maxwell-Boltzmann "modifiée" $N(E) = AE^\alpha \exp(-\beta E)$, dans le cas d'une perturbation forte correspondant à un projectile lourd tel que l'uranium. La figure VI-13 montre la distribution de $(\text{LiF})\text{Li}^+$ associée.

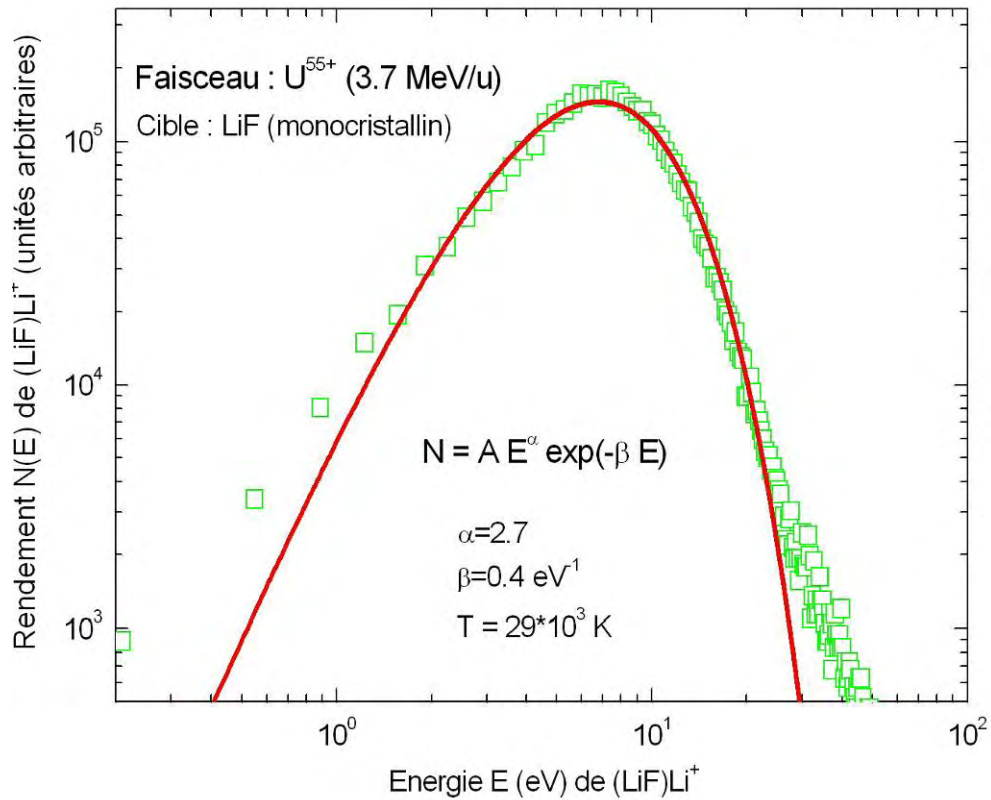


Figure VI-13 : Distribution en énergie pour l'agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$ (projectile U^{55+} (3.7 MeV/u)).

Nous observons que pour un fort pouvoir d'arrêt (U) la distribution de $(\text{LiF})\text{Li}^+$ peut être décrite par une distribution de Maxwell-Boltzmann "modifiée". La valeur de la température $T((\text{LiF})\text{Li}^+)$ déduite à partir de cette approximation est de l'ordre de 29×10^3 K. Cette valeur est en accord raisonnable avec les valeurs de la température de trace mesurées par la spectroscopie

Auger à haute résolution [Staufenbiel 2005, Caron 2006] (voir §VI.2.2). Elle est également cohérente avec la température déterminée pour un faisceau de Kr, $T((\text{LiF})\text{Li}^+) \approx 22 \times 10^3 \text{ K}$.

Dans le prochain paragraphe, nous allons développer un modèle simple de l'explosion coulombienne. Nous pourrons ainsi appliquer ce modèle aux distributions en énergie des ions secondaires.

VI.2.3 *Modèle simple de l'explosion coulombienne*

Avant l'irradiation, la cible est cristalline, ionique. Les atomes se trouvent donc dans un état fortement lié. L'impact d'ions multichargés mène à l'ionisation. Il est à noter que pour les cibles légères (comme le carbone) aux énergies de l'ordre de 5 MeV/u et à partir de $Z_1 = 10$, l'ionisation dans le cœur de trace est totale (la saturation de l'ionisation primaire par le projectile provoque probablement la diminution des rendements Y , chapitre 5 §V.4) [Schiwietz 1996 figure 5, Caron 2006]. Nous pouvons donc à partir de cette hypothèse déduire que dans cette zone de forte perturbation peut intervenir l'explosion coulombienne entre deux noyaux complètement épluchés si le temps de relaxation électronique est suffisamment long. C'est une hypothèse raisonnable dans le cas d'un bon isolant comme le LiF. Donc les atomes se trouvent dans un état "anti-liant" après l'ionisation. Nous allons en conséquence développer un modèle qui est régi par l'interaction coulombienne simple entre deux particules de charge q . Pour décrire ce modèle, nous étudions tout d'abord E , représentant l'énergie potentielle d'interaction.

$$E = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q^2}{R} \quad (\text{VI-1})$$

ϵ_0 est la constante diélectrique du vide et R la distance entre ces deux particules

La distribution en énergie $N(E)$ s'exprime par :

$$N(E)dE = N(R)dR \quad (\text{figure VI-14})$$

Avec $N(R)$ la distribution des distances interatomique initiale.

Ainsi,

$$N(E) = N(R) \left| \frac{dR}{dE} \right|$$

$$\left| \frac{dR}{dE} \right| = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \times \frac{1}{E^2}$$

D'où
$$N(E) = N(R) \times \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \times \frac{1}{E^2}$$

Afin de bien comprendre les mécanismes de l'explosion coulombienne, nous prenons comme hypothèse simple que $N(R)$ est approximé par une distribution gaussienne. Cette distribution représente les variations des positions distances interatomiques dans l'état initial (avant l'excitation).

$$N(R) = e^{-\alpha(R-R_0)^2} \quad (\text{VI-2})$$

Via la formule (VI-1), on en déduit :

$$N(R) \propto e^{-\alpha\left(\frac{1}{E^2} - \frac{2R_0}{E}\right)}$$

Donc la distribution $N(E)$ due à l'interaction coulombienne est donnée par :

$$N(E) = A \times \frac{1}{E^2} \times e^{-\alpha\left(\frac{1}{E^2} - \frac{2R_0}{E}\right)} \quad (\text{VI-3})$$

Avec A l'amplitude de la distribution,

α le paramètre d'ajustement

$R_0 = 1/E_{max}$ qui permet d'ajuster le maximum de la distribution.

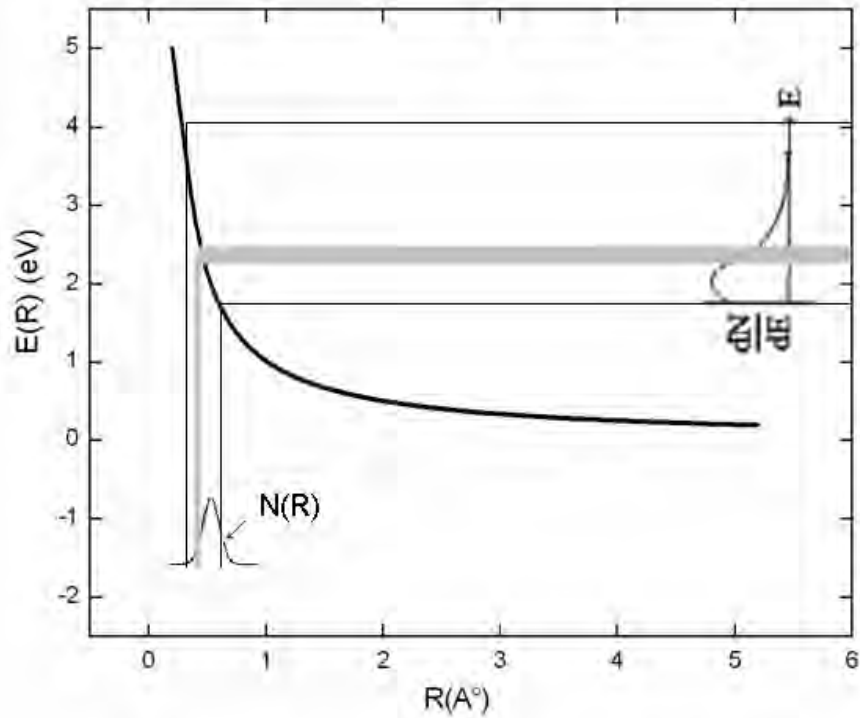


Figure VI-14 : Energie potentielle d'interaction coulombienne E en fonction de la distance R entre deux particules.

Notons qu'une expérience a été menée au GANIL avec pour but de mettre en évidence directement le processus de l'explosion coulombienne par l'intermédiaire de la spectroscopie d'ions secondaires en condition de canalisation [Koumeir 2008].

Le principe de cette expérience était d'étudier l'émission ionique en coïncidence avec des ions lourds qui ont perdu une certaine quantité d'énergie dans un cristal de Ge. L'intérêt de cette expérience (utilisant l'effet de la canalisation) était de comparer les effets sur les rendements d'émission ionique pour les projectiles bien canalisés (faible perte d'énergie) et les projectiles de forte perte d'énergie (ceux qui passent près des rangées d'atomes de la cible).

Les spectres de masse des ions secondaires ont été mesurés par la méthode du temps de vol. La perte d'énergie des projectiles a été mesurée avec un spectromètre magnétique équipé de chambres d'ionisation. La perte d'énergie des ions projectiles frottant les rangées d'atomes à l'intérieur du cristal peut attendre deux fois celles des projectiles en incidence non-canalisis ("random") et plus de quatre fois celles des ions projectiles bien canalisés. Une explosion coulombienne pourrait se manifester par l'apparition d'ions secondaires du Ge dans le cas de très forte perte d'énergie des ions lourds [L'Hoir 2009].

VI.2.4 Application et comparaison de $N(E)$

La figure VI-15 montre la distribution en énergie du $(\text{LiF})\text{Li}^+$ émis du LiF par Kr^{33+} (10.1 MeV/u) approximée par les deux modèles théoriques, la cascade linéaire et l'explosion coulombienne simple, et par la distribution de Maxwell-Boltzmann :

(courbe 15a) Modèle de la cascade linéaire (chapitre 2 §I) :

$$N(E) = A E / (E + U_{\text{subl.}})^n$$

$$A = 121000$$

$$U_{\text{subl.}} (\text{LiF}) = 1.65 \text{ eV et } n = 3$$

(courbe 15b) Distribution de Maxwell-Boltzmann (§VI.2.2) :

$$N(E) = A E \exp(-\beta E)$$

$$A = 122000$$

$$\beta = 0.51 (\text{eV})^{-1}$$

(courbe 15c) Modèle de l'explosion coulombienne simple (§VI.2.3):

$$N(E) = A \times \frac{1}{E^2} \times e^{-\alpha \left(\frac{1}{E^2} - \frac{2R_0}{E} \right)}$$

$$A = 135000$$

$$\alpha = 5.93$$

$$R_0 = 0.14 \text{ eV}^{-1}$$

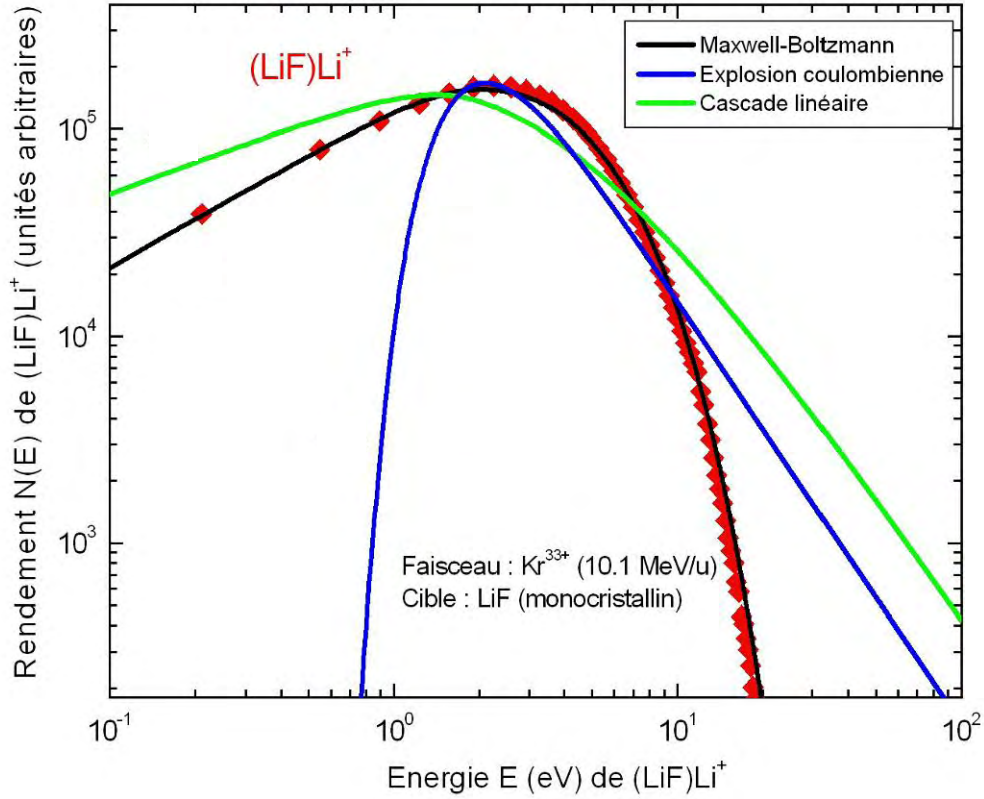


Figure VI-15 : Distribution en énergie du $(\text{LiF})\text{Li}^+$ émis du LiF par Kr^{33+} avec des ajustements de : Cascade linéaire, Maxwell-Boltzmann et Explosion coulombienne équation (VI-3).

Nous observons que ni le modèle de la cascade linéaire (courbe verte), ni le modèle de l'explosion coulombienne décrit précédemment (courbe bleue) ne peuvent décrire la distribution expérimentale du $(\text{LiF})\text{Li}^+$. La distribution de Maxwell-Boltzmann (courbe noir) décrit bien cette distribution, comme nous l'avons vu dans le paragraphe VI.2.2.

Le modèle de la cascade linéaire ne décrit pas la distribution d'agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$. Ce résultat est attendu car ce modèle est rencontré pour des projectiles dont l'énergie cinétique est de l'ordre du keV jusqu'à quelques centaines de keV [Sigmund 1969] (pulvérisation nucléaire, cascade de collisions élastiques, chapitre 2 § B-I). La distribution en énergie des atomes pulvérisés dans ce domaine suivant est piquée à très basses énergies, en général pour $E \approx 1 \text{ eV}$

[Betz 1994]. Le modèle de l'explosion coulombienne donne une distribution plus décalée vers les hautes énergies ≈ 15 eV [Koumeir 2008]. A partir de cela, nous pouvons conclure que le processus générant la pulvérisation n'est probablement pas dû aux états anti-liants (explosion coulombienne). Il est à noter que cette conclusion reste toujours valable pour les forts pouvoirs d'arrêt électroniques supérieurs à 8 keV/nm (voir annexe 6).

Czerski et al. [Czerski 2004] ont étudié l'émission des ions secondaires pulvérisés de films de BeO par ions rapides d'or. Une forte dépendance de la partie de haute énergie de la distribution en énergie des ions Be^+ émis a été observée en fonction de la perte électronique. Cela a été expliqué par les processus hors équilibre qui se déroulent dans la trace de l'ion.

Le décalage en énergie lors de l'augmentation du pouvoir d'arrêt électronique peut être expliqué comme suit :

Les spectres d'énergie sont déterminés par l'interaction du monomère Li^+ ou l'agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$ avec un potentiel de trace nucléaire positif de longue durée. Le potentiel maximal de trace du polypropylène pour les ions Xe est d'environ 180 eV dans le "bulk" [Schiwietz 1996]. Compte tenu de la densité d'électrons, on s'attend à des valeurs plus élevées dans le LiF, mais réduites d'un facteur deux à la surface [Schiwietz 1996]. Ainsi, nous estimons un décalage d'énergie de 100 à 200 eV à temps zéro pour du Xe en incidence normale à la surface du LiF. Nos valeurs, autour de 10 eV, indiquent qu'il pourrait y avoir une neutralisation partielle de la charge. Dans la gamme d'énergie (≈ 5 MeV/u), le potentiel de la trace devrait être, à peu près, proportionnel à la charge du projectile q (figure 5 dans Schiwietz [1996]).

Dans ce paragraphe nous avons présenté les distributions en énergie des ions secondaires. Nous avons développé un modèle de l'explosion coulombienne. Nous avons vu que ce modèle et le modèle de la cascade linéaire ne peuvent pas décrire l'émission des ions secondaires. Ceci indique que le processus générant la pulvérisation n'est pas d'origine coulombienne ni dû à la cascade. Dans le cas des faibles perturbations ($S_e \leq 8.3$ keV/nm, §VI.2.1.a), les distributions en énergie des ions secondaires peuvent être bien approximés par une distribution de Maxwell-Boltzmann. Dans le cas des fortes perturbations ($S_e > 8.3$ keV/nm, §VI.2.1.a), les distributions en énergie des ions secondaires peuvent être bien approximés par une distribution de Maxwell-Boltzmann "modifiée". L'approximation avec une distribution de type Maxwell-Boltzmann est une indication possible que le processus générant la pulvérisation doit être principalement d'origine thermique. Le facteur E^α dans la distribution de Maxwell-Boltzmann pourrait être une

indication de l'existence d'un effet de neutralisation des atomes en traversant la surface de la cible, ou un effet répulsif dû au potentiel positif du cœur de trace généré par le projectile (voir [Lenoir 2007, Pereira 1997]).

Les “températures” déduites de Maxwell-Boltzmann diminuent en fonction de la masse et de la taille d'éjecta. Cela pourrait être une indication possible de l'existence de différentes zones d'émission pour des ions autour de la trajectoire du projectile. Dans le prochain paragraphe, les distributions angulaires de ces ions secondaires seront étudiées.

VI.3 Distributions angulaires

Les distributions angulaires des neutres Li émis ont été mesurées avec la méthode du collecteur “catcher”. Deux feuilles d'aluminium (Al) ultra-pur ont été montées dans un arc de cercle de diamètre constant, perpendiculaire et parallèle au plan de l'impact du faisceau. Les particules pulvérisées sont ensuite collectées sur ces feuilles lors de l'irradiation par des ions lourds (voir annexe 4). Après l'irradiation, la distribution angulaire est déterminée par la technique d'ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis) [Assmann 2007, Toulemonde 2003, Toulemonde 2002]. Afin de comparer directement les résultats entre les neutres et les ions, nous avons sélectionné les événements correspondant à la géométrie du catcher. Cette sélection a été opérée par une routine développée sous ROOT (annexe 3).

Dans ce paragraphe, nous allons présenter les distributions angulaires des différents ions secondaires émis. Dans un premier temps, nous allons étudier l'évolution des distributions angulaires du monomère ${}^7\text{Li}^+$ en fonction du pouvoir d'arrêt électronique S_e et de l'angle d'incidence δ . Ensuite, nous allons comparer les distributions angulaires du monomère ${}^7\text{Li}^+$ et du premier agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$. Nous terminons cette partie par la présentation des distributions angulaires des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$. Dans un second temps, nous comparons les distributions angulaires des ions secondaires avec celles de neutres émis [Assmann 2007, Toulemonde 2003, Toulemonde 2002].

VI.3.1 Distribution angulaire du monomère ${}^7\text{Li}^+$

Comme nous l'avons vu dans le § VI.1, la méthode XY-TOF permet de distinguer les atomes et les agrégats (sélectionnés en masse), et de déterminer les distributions en angle pour chaque masse. Il est donc possible de déterminer l'évolution de la distribution angulaire en

fonction de la masse. Dans ce paragraphe nous allons étudier la distribution angulaire du monomère ${}^7\text{Li}^+$.

VI.3.1.a L'évolution de la distribution angulaire en fonction de S_e et de δ

La figure VI-16 montre l'évolution des rendements de la distribution angulaire, $dY/d\theta$, du monomère Li^+ pour différents projectiles (Ca, Kr, Xe et Pb). La figure représente la distribution du Li^+ dans la direction perpendiculaire (\perp) au plan d'incidence du faisceau. L'angle d'incidence des faisceaux est de 43° par rapport à la normale de la surface.

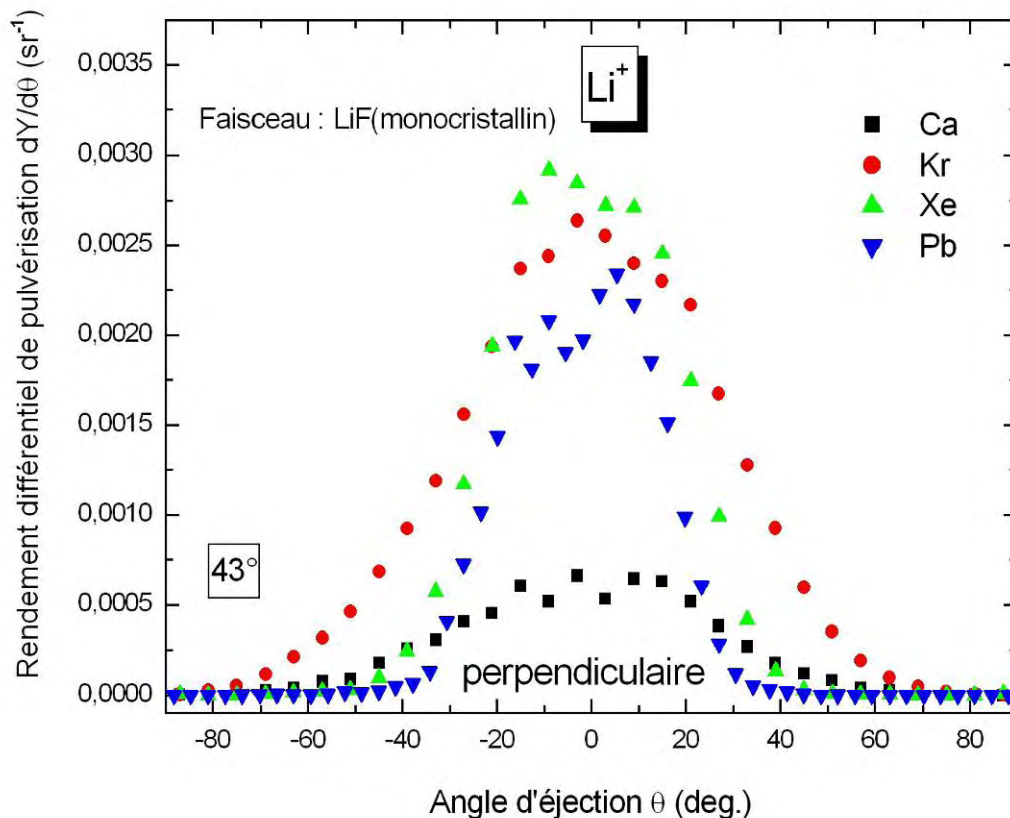


Figure VI-16 : Evolution de la distribution angulaire du ${}^7\text{Li}^+$ en fonction du pouvoir d'arrêt.

La figure VI-16 permet de tirer les conclusions suivantes :

- 1- Quel que soit l'ion projectile, en incidence 43° par rapport à la normale, les ions sont pulvérisés préférentiellement suivant la normale à la cible de LiF.

- 2- Le maximum de la distribution angulaire augmente en fonction du pouvoir d'arrêt électronique. Par ailleurs, nous retrouvons l'effet de "saturation" du rendement Y des ions entre Kr et Pb.
- 3- L'éjection des ions pulvérisés devient de plus en plus « piquée » à 0° lors de l'augmentation du pouvoir d'arrêt électronique.

Nous allons maintenant étudier l'évolution des rendements de la distribution angulaire des ions en fonction de l'angle d'incidence. La figure VI-17 montre donc l'évolution des rendements de la distribution angulaire du monomère Li^+ émis de LiF par Xe^{44+} pour différents angles d'incidence δ .

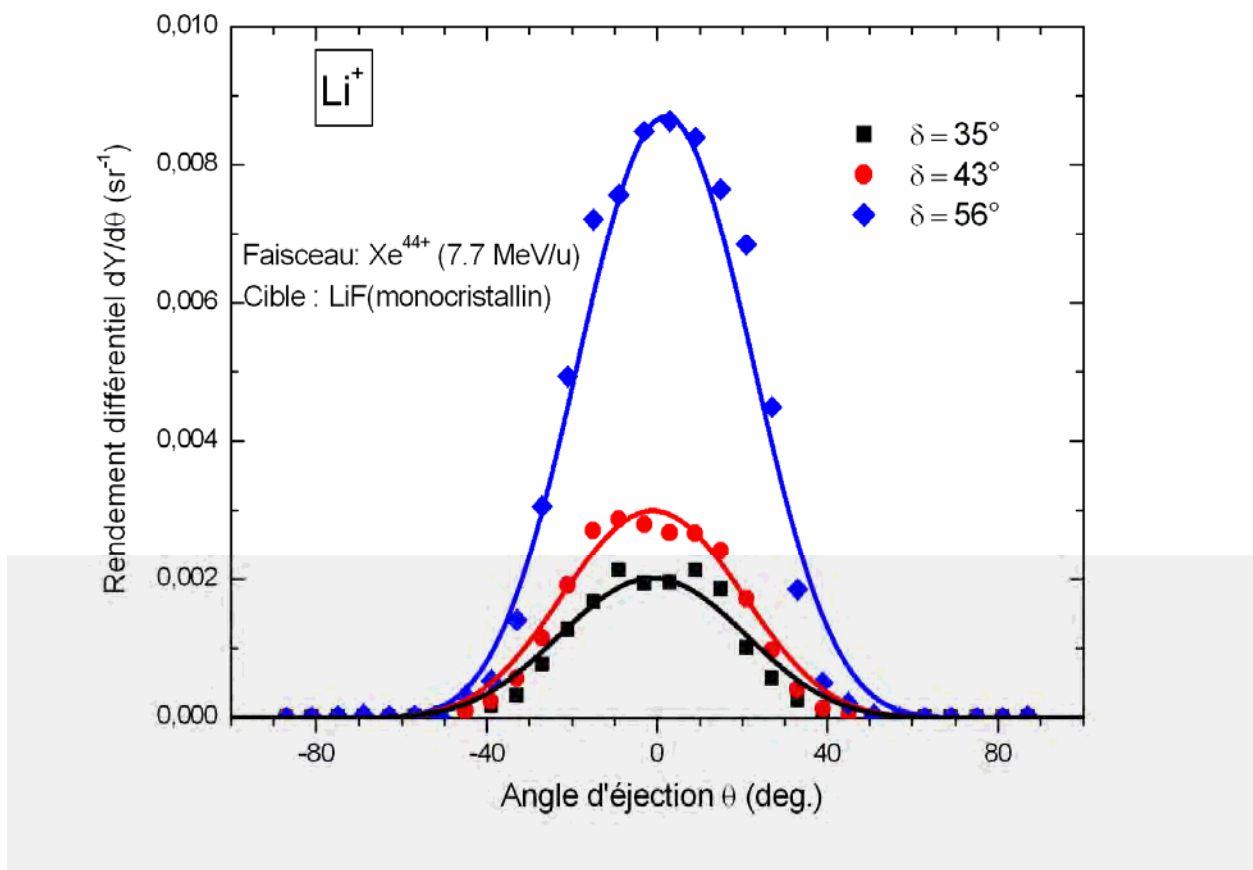


Figure VI-17 : Comparaison entre la distribution angulaire du Li^+ obtenue en incidence $\delta = 35^\circ, 43^\circ$ et 56° , lors de l'impact d'ions Xe^{44+} (7.7 MeV/u) sur LiF monocristallin.

Il existe néanmoins des différences entre les distributions angulaires obtenues avec différents angle d'incidence :

- 1- Les courbes sont plus “piquées” quand l'angle d'incidence augmente.
- 2- L'amplitude maximale des distributions angulaires augmente en fonction de l'angle d'incidence δ .

A partir de la mesure de l'ensemble des distributions angulaires en fonction de pouvoir d'arrêt et de l'angle d'incidence, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

- Quel que soit l'ion projectile, ces distributions présentent une symétrie par rapport à la normale à la surface, soulignant le fait que l'éjection des ions se fait de façon préférentiellement perpendiculaire à la cible de LiF. Puisque ni l'incidence des ions projectiles, ni leur pouvoir d'arrêt n'influent sur la direction d'éjection, il semble donc que ce soit la surface de la cible de LiF qui impose la direction d'éjection des ions secondaires pulvérisés pour la direction (\perp).
- Entre le Ca et le Kr, le nombre d'ions éjectés augmente, et entre Kr et Pb le nombre d'ions éjectés est constant.

Globalement, ces résultats sont en accord avec ceux obtenus pour d'autres cibles. En effet, S. Schlutig et al. [Schlutig 2001] observent également une éjection préférentielle suivant la normale à la cible dans le cadre de l'étude de la pulvérisation du dioxyde d'uranium UO_2 par des ions lourds rapides et lents par F. Haranger et al. [Haranger 2003]. Les mêmes résultats ont été observé par H.D. Mieskes [Mieskes 1999] pour la pulvérisation d'or, du titane, de la zircone, du grenat d'yttrium ($\text{Y}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$) et de l'iodure de césium (CsI), pour des ions projectiles d'énergie supérieure à 100 MeV. En revanche, nos résultats ainsi que ceux de S. Schlutig, F. Haranger et H.D. Mieskes sont en contradiction avec les évolutions proposées par les modèles d'onde de choc et d'impulsion de pression, qui prédisent une distribution angulaire “piquée” à 45° (chapitre 2, § B-II.3).

Nous allons maintenant présenter et comparer les distributions angulaires du monomère $^7\text{Li}^+$ avec celles des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$.

VI.3.2 Distributions angulaires du monomère ${}^7\text{Li}^+$ et des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$

Les figures VI-18 et 19 montrent les distributions angulaires du monomère ${}^7\text{Li}^+$ et les agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$, pour le système de collision Kr^{33+} sur LiF (l'angle d'incidence est de $\delta = 35^\circ$), dans la direction perpendiculaire (\perp) au plan d'incidence du faisceau.

- La figure VI-18 présente une comparaison de la distribution angulaire entre le ${}^7\text{Li}^+$ et le premier agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$.
- Les figures VI-19a et b montrent l'évolution de la distribution angulaire des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l'agrégat : $n = 1, 2$ et 3 sur la figure IV-19a, et $n = 1, 3$ et 7 sur la figure IV-19b.

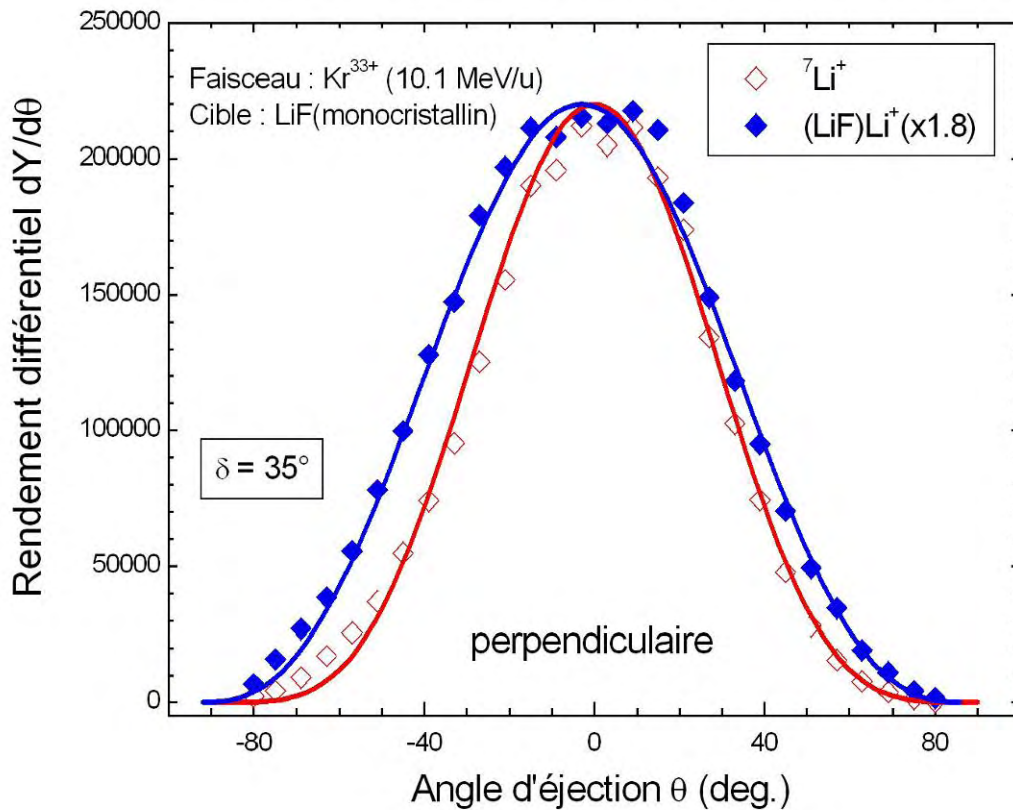


Figure VI-18 : Comparaison entre la distribution angulaire (\perp) du monomère Li^+ et de l'agrégat $(\text{LiF})\text{Li}^+$ lors de l'impact d'ions Kr^{33+} (10.1 MeV/u) sur LiF monocristallin.

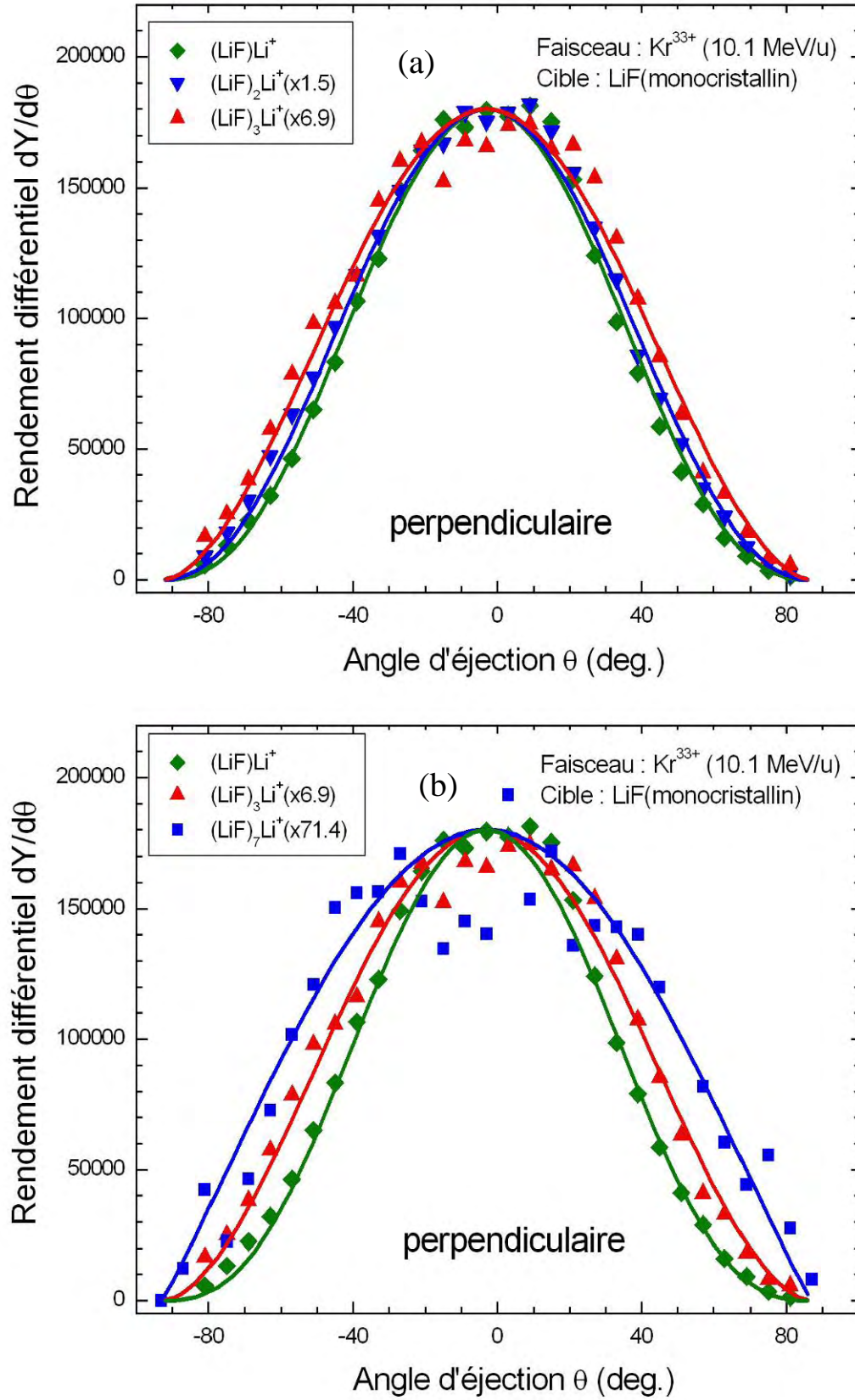


Figure VI-19 : Distributions angulaires (\perp) des agrégats $(\text{LiF})\text{Li}^+$, $(\text{LiF})_2\text{Li}^+$, $(\text{LiF})_3\text{Li}^+$ et $(\text{LiF})_7\text{Li}^+$.

Les distributions angulaires du monomère et des agrégats présentent une symétrie par rapport à la normale de la surface de la cible. Nous retrouvons que l'éjection des ions se fait toujours préférentiellement à 0° . Les distributions du monomère et des agrégats sont partiellement différentes. Ces distributions dépendent de la taille de l'éjecta. En effet, la distribution angulaire dans le second régime ($n \geq 6$) devient plus large (exemple $n = 7$, figure VI-19). Cela indique que le processus de formation de ces ions doit être différent, et/ou qu'ils sont émis de différentes zones autour de la trajectoire du projectile (voir §VI.2.2).

Les figures VI-20 montrent l'évolution de la distribution angulaire des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ en fonction de la taille n de l'agrégat : $n = 1, 2$ et 3 , dans la direction parallèle ($//$) au plan d'incidence du faisceau.

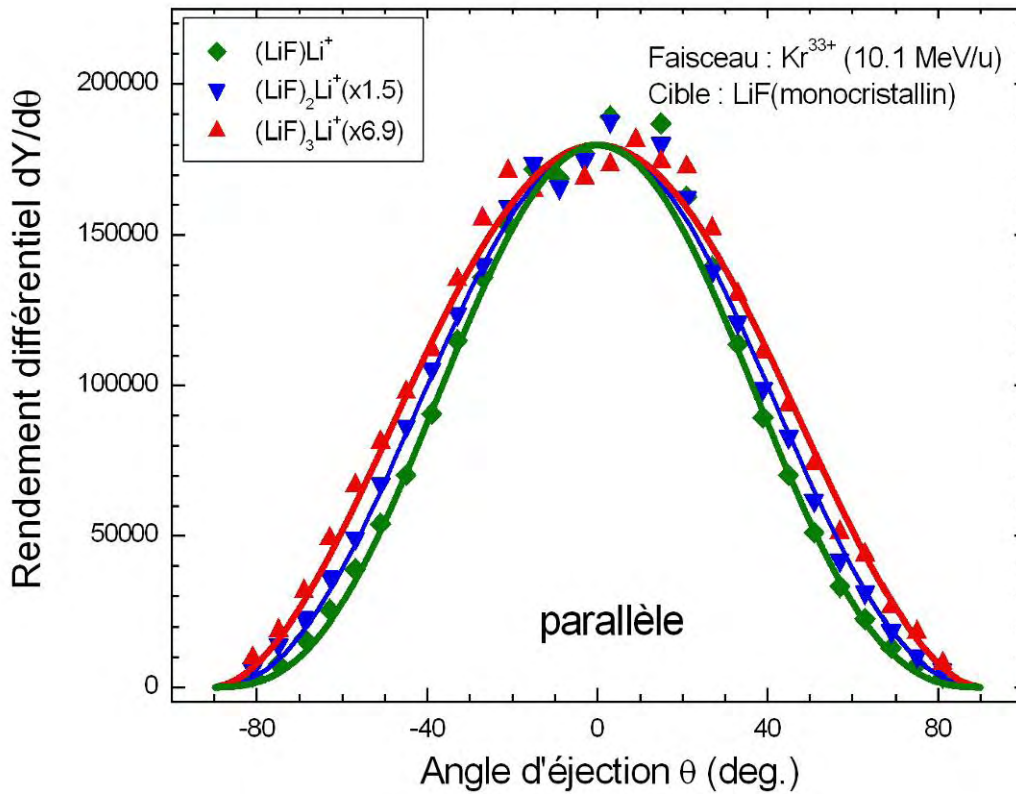


Figure VI-20 : Distributions angulaires ($//$) des agrégats $(\text{LiF})\text{Li}^+$, $(\text{LiF})_2\text{Li}^+$ et $(\text{LiF})_3\text{Li}^+$.

Nous observons que les distributions angulaires ($//$) des agrégats ne montrent pas une différence avec celles de (\perp). Cela montre qu'il n'y a pas un effet d'éjection des particules vers l'avant ou l'arrière du projectile.

L'ensemble des résultats concernant les distributions en énergie et en angles des ions secondaires est cohérent. Ces distributions dépendent de la masse et de la taille de l'éjecta. La distribution en énergie se décale vers les basses énergies (VI.2.2), et la distribution angulaire devient plus large (VI.3.2). Cela pourrait être une indication de l'existence des différents mécanismes de l'émission de ces ions secondaires.

VI.3.4 *Distribution angulaire : dépendance en $(\cos\theta)^n$*

Comme nous l'avons vu au cours du chapitre 2, le modèle de la pointe non linéaire propose une dépendance en $(\cos\theta)^n$ avec $1 \leq n \leq 2$ dans le domaine d'énergie du keV [Andersen 1985, Matsuda 1986]. En revanche, dans le domaine de la pulvérisation électronique, l'exposant n obtenu expérimentalement peut varier de 0.5 à 6 suivant le matériau considéré (chapitre 2, § B-II.5.d). Nous avons ajusté les distributions angulaires des ions secondaires du LiF avec une fonction de la forme : $A(\cos\theta)^n$, où A correspond au nombre d'ions secondaires pulvérisés par ion projectile et par stéradian, et n est la puissance de la fonction cosinus. Dans les figures précédentes (VI-18 et 19), les distributions sont normalisées sur le même paramètre A . Les valeurs de n obtenues pour chaque ion sont les suivantes :

$$\begin{aligned} n(^7\text{Li}^+) &\approx 4.2 \\ n((\text{LiF})\text{Li}^+) &\approx 2.7 \\ n((\text{LiF})_2\text{Li}^+) &\approx 2.2 \\ n((\text{LiF})_3\text{Li}^+) &\approx 1.8 \\ n((\text{LiF})_7\text{Li}^+) &\approx 1.1 \end{aligned}$$

Nous trouvons que la valeur de la puissance de la fonction en cosinus n évolue en fonction de la taille d'éjecta. Elle varie de 1.1 à 4 pour les masses allant de 7 à 189 u. Ces valeurs de n indiquent une éjection « piquée » selon la direction perpendiculaire à la cible.

Nous allons maintenant comparer nos observations concernant les distributions angulaires avec l'ensemble des résultats de la littérature présentés au cours du chapitre 2.

Dans des conditions de vide "standard", J. Lenoir et al. [Lenoir 2007] obtiennent une distribution angulaires des ions secondaires de la forme $(\cos\theta)^n$ lors de l'impact de Ca^{17+} (9 MeV/u, régime électronique $S_e \approx 3.6$ keV/nm) sur une cible de LiF monocristallin avec une incidence $\delta = 45^\circ$. La valeur de n est comprise entre 2.5 et 4, $n = 4$ pour le monomère et $n = 2.5$

pour le premier agrégat. Ces valeurs de la puissance du cosinus sont à peu près les mêmes que celles que nous obtenons ici. Pour la pulvérisation du dioxyde d'uranium UO_2 par ions lourds rapides dans le régime du pouvoir d'arrêt électronique, S. Schlutig et al. [Schlutig 2001] obtiennent une distribution angulaire des atomes d'uranium émis de la forme $(\cos\theta)^n$ (n compris entre 3.0 et 6.7, pour différents pouvoirs d'arrêt électronique). Ces valeurs de la puissance du cosinus se rapprochent de celles que nous obtenons pour les ions secondaires émis de LiF.

H.D. Mieskes [Mieskes 1999] obtient respectivement des valeurs de $n \approx 3.2$ et 3.6 pour les atomes de Cs pulvérisés d'une cible de CsI par des ions projectiles I^{5+} de 210 MeV ($S_e = 14.6$ keV/nm), et pour les atomes d'Au d'une cible d'Au par des ions projectiles Au^{16+} de 230 MeV ($S_e = 55.4$ keV/nm). Les distributions angulaires des atomes de Cs et d'Au pulvérisés, pour un angle d'incidence du faisceau d'ions projectiles de 71° , sont donc aussi comparables à celles obtenues dans notre étude.

Cette fonction, $A(\cos\theta)^n$, nous permet cependant de montrer que quels que soient l'ion projectile et son angle d'incidence, l'émission des ions dans le domaine de la pulvérisation électronique se fait de manière très anisotrope ($n > 1$), avec une direction préférentielle d'éjection suivant la normale à la cible.

La courbe en $(\cos\theta)^n$ avec $n \geq 2$ ne correspond à aucun modèle de pulvérisation électronique (chapitre 2), ce qui ne permet pas une interprétation physique plus approfondie.

VI.3.5 Comparaison ions - neutres

M. Toulemonde et al. [Toulemonde 2002-2003, Assmann 2007] ont étudié la pulvérisation des éjecta neutres de LiF par la technique du catcher (voir annexe 4). Par exemple, pour un faisceau de Ni (1 MeV/u) de $S_e \approx 10.4$ keV/nm, il y a un rendement $Y^0 \approx 260$ d'atomes neutres pulvérisés par projectile. Pour les ions secondaires et avec un pouvoir d'arrêt électronique très comparable, comme le Kr (10.1 MeV/u) de $S_e \approx 8.3$ keV/nm, nous avons un rendement $Y^+ \approx 0.16$ d'ions secondaires pulvérisés (LiF) par projectile. Les ions, molécules ou agrégats chargés (positifs ou négatifs) représentent donc une fraction R (Y^+/Y^0) de l'ordre de 6×10^{-4} . Cela indique que la plus grande partie des particules éjectées est neutre.

Une comparaison des distributions angulaires des neutres et des ions secondaires émis de LiF (monocristallin) par deux projectiles comparables (domaine de pulvérisation électronique) est présentée sur la figure VI-21. La figure VI-21 montre donc la distribution angulaire des neutres émises du LiF par du Ni ($S_e \approx 10.4$ keV/nm, $\delta = 46^\circ$), et les distributions angulaires du Li^+ , du $(\text{LiF})\text{Li}^+$ émis du LiF par du Kr ($S_e \approx 8.3$ keV/nm, $\delta = 35^\circ$).

La distribution des neutres présente la somme de deux contributions différentes : (1) une distribution isotrope en cosinus ($\cos\theta$)¹ et (2) un “jet” perpendiculaire à la surface. L’existence de ce jet n’est pas encore expliquée. Une explication possible pourrait être la suivante : La largeur de la distribution angulaire dépend de la masse et de la taille de l’éjecta.

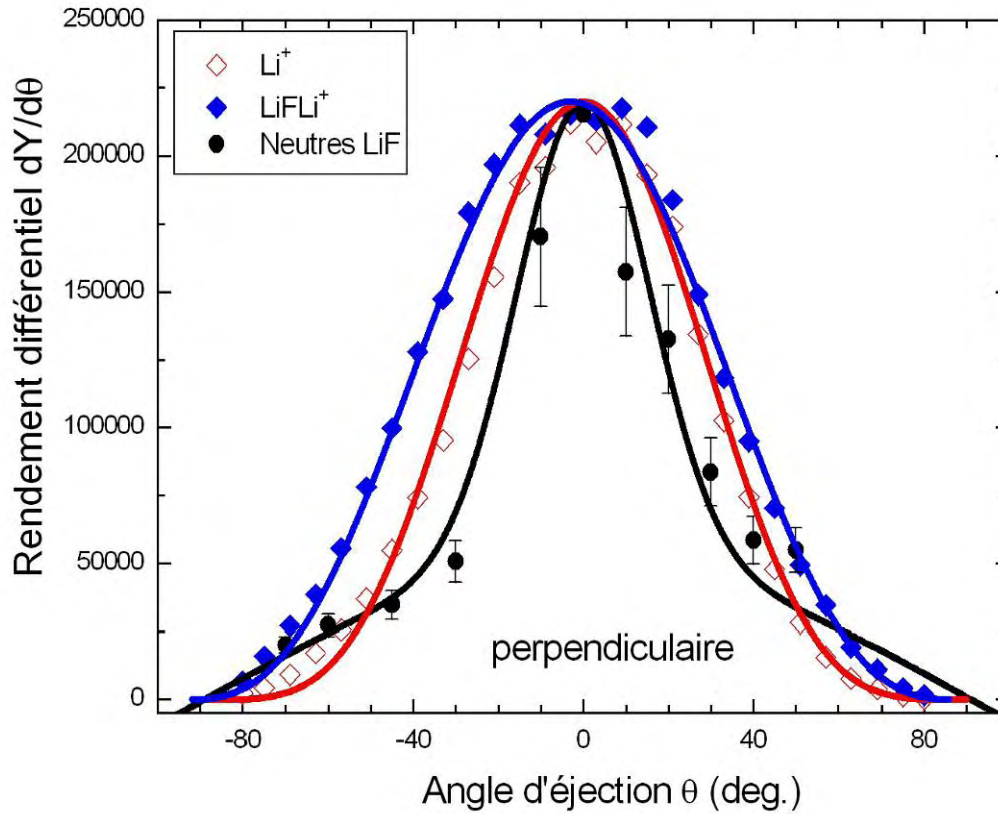


Figure VI-21 : Distributions angulaires pour Li^+ , $(\text{LiF})\text{Li}^+$ et neutres.

Nous constatons que :

- Les distributions du monomère et du premier agrégat sont décrites par une seule fonction anisotrope $N(\theta) = A \cos^n(\theta)$ avec $n > 1$ (n compris entre 2.7 et 4.2).

- La comparaison neutres/ions montre que leurs distributions sont différentes. Cela indique que les processus de production associés doivent être, eux aussi, différents. Donc ceci ne permet pas d'expliquer la forme particulière du jet associé aux distributions angulaires des neutres.

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 5, bien que le modèle d'onde de choc explique, d'une part, l'évolution des rendements en fonction de la taille n d'agrégat (§V.1) et, d'autre part, l'évolution des rendements des ions secondaires en fonction de l'angle d'incidence (§V.6), les évolutions des rendements en fonction du pouvoir d'arrêt électronique (§V.4) et les distributions angulaires sont en désaccord avec les prédictions de ce modèle (chapitre 2).

D'une part, si nous considérons l'ensemble de nos résultats décrits dans les chapitres 5 et 6, ni les modèles de pulvérisation par pointe thermique, ni par l'onde de choc ne permettent de les interpréter en totalité. Ce résultat soulève un problème. La solution réside peut-être dans le fait que les modèles de pulvérisation par pointe thermique et par onde de choc proposés pour expliquer les résultats du domaine non-linéaire de la pulvérisation nucléaire ne sont pas adaptés à la pulvérisation électronique dans le cas du LiF. Une autre explication possible est que la pulvérisation n'est pas explicable par un seul et unique modèle.

D'autre part, si nous considérons les résultats concernant les distributions en énergie nous pourrions conclure que : (1) Le processus générant la pulvérisation devrait être principalement d'origine thermique (approximation Maxwell-Boltzmann) et/ou de thermalisation. (2) La différence des distributions en énergie et en angle des agrégats indique que le processus de formation de ces agrégats doit être différent.

Conclusion et perspectives

La mise en mouvement des atomes d'un matériau, induite par un ion projectile, peut se traduire dans le volume par la création de traces de défauts et à la surface par l'éjection d'atomes vers le vide. L'étude expérimentale de la pulvérisation peut apporter de précieuses informations afin d'appréhender les mécanismes initiaux de l'émission des particules de la cible correspondant à la relaxation de l'énergie déposée. Pour comprendre ce phénomène, nous nous sommes intéressés à la fois à la pulvérisation de fluorure de lithium (LiF, isolant cristallin "modèle" à gap très important ≈ 14 eV) par les ions lourds et à la comparaison de ces données expérimentales aux modèles théoriques existants.

La technique d'imagerie XY-TOF a été employée pour étudier la pulvérisation du LiF (mono- et polycristallin) avec un nouveau dispositif ultra vide (AODO). La cible de LiF a été irradiée avec plusieurs ions projectiles différents (du soufre à l'uranium) sur la ligne de Sortie Moyenne Energie (SME) ≈ 10 MeV/u du GANIL.

Nous avons étudié l'effet de la préparation et du contrôle des surfaces des cibles. Pour cela, nous avons comparé deux spectres de masse des ions secondaires émis de LiF en vide standard et en ultra vide (AODO). Dans le cas du vide standard, les pollutions surfaciques de type C_xH_y dominent le spectre de masse. En conséquence, les agrégats $(LiF)_nLi^+$ ne sont pas observables. Avec l'expérience en ultra vide et une cible de LiF bien préparée, l'émission de ces agrégats est prépondérante. Ceci a bien montré l'importance et la pertinence des études expérimentales avec des surfaces bien préparées et contrôlées "in-situ".

L'étude de ces spectres a démontré que l'émission sous forme d'agrégats Li_m^+ ($m > 0$) et $(LiF)_nLi^+$ ($n \geq 1$) était prépondérante par rapport au monomère Li^+ émis. La contribution des agrégats $(LiF)_nLi^+$ ($n \geq 1$) augmente avec la perte d'énergie électronique des projectiles dans la cible de LiF (60 % dans le cas du soufre jusqu'à 90 % pour l'uranium).

Deux régimes de production des agrégats ont été mis en évidence. Un régime pour les agrégats légers avec une forte pente ($n < 6$), et un régime pour les agrégats plus lourds ($n \geq 6$) avec une pente plus douce. Il semble que les agrégats légers de $(LiF)_nLi^+$ ($n < 6$) ne soient pas produits de la même manière que les agrégats plus lourds ($n \geq 6$). Différents modèles pour la production de ces agrégats ont été considérés, tels que : le modèle de l'onde de choc (une loi en puissance n^{-2}), les modèles statistiques (une dépendance en exponentielle ou lognormale).

Un effet de seuil de pouvoir d'arrêt électronique pour l'émission des gros agrégats ($n \geq 6$) a été mis en évidence. Ces agrégats sont observables à partir de $S_e \approx 6.8$ keV/nm.

Les rendements totaux de production des agrégats augmentent avec l'épaisseur de la couche de LiF évaporée. Il semble que les petits agrégats ($n < 6$) soient émis d'une couche proche de la surface d'environ 11 nm et les gros agrégats ($n \geq 6$) soient émis à partir d'une profondeur de l'ordre de 30 nm.

Nous avons aussi étudié l'émission des ions secondaires en fonction du pouvoir d'arrêt S_e . Deux régimes de l'évolution des rendements Y des ions secondaires avec S_e sont observés. Pour les faibles S_e (≤ 8 keV/nm), Y est proportionnel à S_e^2 . Pour les forts S_e (> 8 keV/nm, à partir d'un projectile tel que krypton), Y est constant. L'augmentation du dépôt d'énergie n'a plus d'effet sur les rendements au delà de ce seuil. Cet effet pourrait être dû à la saturation de l'ionisation primaire par le projectile.

Grâce à cette technique expérimentale (XY-TOF), les composantes du vecteur vitesse de chaque ion pulvérisé ont été déterminées. Les distributions en énergie des ions secondaires augmentent en fonction de la perte d'énergie électronique S_e et aussi en fonction de l'angle d'incidence δ . Ces données expérimentales permettent également de tester des modèles théoriques proposés dans la littérature (par exemple : le modèle de l'onde de choc, pointe thermique, explosion coulombienne...). Il apparaît qu'aucun de ces modèles ne peut interpréter et reproduire l'ensemble de ces résultats. Il est à noter que la distribution de type Maxwell-Boltzmann décrit bien les distributions en énergie des ions secondaires. Cela donne une indication que les processus générant la pulvérisation peuvent être principalement d'origine thermique.

Les distributions en énergie et en angle du monomère ${}^7\text{Li}^+$ et des agrégats $(\text{LiF})_n\text{Li}^+$ ($n \geq 1$) sont différentes. Ces distributions dépendent de la masse de l'éjecta. Cela pourrait être une indication de l'existence des différents mécanismes de l'émission et formation de ces agrégats.

Les distributions angulaires des ions secondaires (dépendance en puissance de cosinus) pulvérisés du LiF sont différentes de celles observées pour les éjecta neutres (cosinus + jet). Nos observations ne permettent donc pas d'expliquer la forme particulière du jet associé aux distributions angulaires des neutres.

Il serait intéressant de détecter et d'étudier les ions secondaires négatifs émis du LiF. Il serait donc intéressant de comparer ces résultats avec ceux des ions positifs, principalement leurs distributions en énergie et en angle. Cela nous donnera la possibilité de comparer les mécanismes générant l'émission des ions positifs et négatifs, afin de vérifier les résultats de J.A.M. Pereira [Pereira 1997].

Concernant les perspectives dans le moyen terme, une série d'expériences est prévue sur ARIBE. Cette ligne permet d'explorer :

- 1- le domaine des basses vitesses du projectile où le pouvoir d'arrêt nucléaire S_n devient prépondérant par rapport au pouvoir d'arrêt électronique S_e .
- 2- l'effet de la charge incidente, donc de l'énergie potentielle associée ("potentiel sputtering") [Haranger 2006, Boujadar 2005].

Il est aussi prévu d'étudier des matériaux d'intérêt astrophysique comme les silicates et les glaces (H_2O , CO , CO_2 , NH_3 ...). Ces matériaux sont omniprésents dans l'espace et exposés à l'irradiation ionique (vent solaire, rayons cosmique). Au GANIL, les faisceaux d'ARIBE peuvent simuler l'effet du vent solaire (keV) et les faisceaux de haute et moyenne énergie (HE, SME), ainsi que, IRRSUD, l'effet du rayonnement cosmique.

Concernant les silicates, un échantillon de néphéline $(Na,K)AlSiO_4$ a déjà été récemment irradié sur la ligne SME du GANIL (Ge^{28+} à 9.12 MeV/u). Ce silicate est une roche caractéristique de la surface de mercure. Il est intéressant de connaître l'évolution de la stoechiométrie de cet échantillon sous irradiation.

Concernant les glaces, il est notamment prévu d'irradier des mélanges de molécules simples (H_2O - CO - NH_3 par exemple). Une attention particulière sera portée sur la création de molécules plus complexes (prébiotiques). Ces résultats vont compléter des études actuellement réalisées par spectroscopie infrarouge [Pilling 2010].

Annexes

Annexe 1

Expression du temps de vol (TOF) de la ligne de gaz

- Calcul de la ligne de gaz figure 1:

$$\cot g(\theta_p) y_p = z_p \quad (\text{un ion d'hélium dans ce plan a des coordonnées } (0, y_p, z_p))$$

Cet ion d'hélium est soumis au champ uniforme E_1 pendant une durée t , puis est soumis à un champ uniforme E_2 pendant une durée t_s et est détecté par les galettes. Son temps de vol est donc :

$$\text{TOF} = t_1 + t_2 - t_s$$

1. t_1 (extraction)

$$a = qE/m, E = U_1/d_1 \Rightarrow a = qU_1/md_1.$$

$$v_1 = \frac{qU_1}{md_1} * t + 0 \Rightarrow z = \frac{qU_1}{2md_1} * t^2 + z_p$$

$$\begin{aligned} d_1 &= \frac{qU_1}{2md_1} * t_1^2 + z_p = \frac{qU_1}{2md_1} t_1^2 + \cot g(\theta_p) y_p \\ \text{Donc} \quad \Rightarrow t_1 &= \left(\frac{2md_1}{qU_1} |d_1 - \cot g(\theta_p) y_p| \right)^{1/2} \end{aligned}$$

2. t_2 (post accélération)

$$v_2 = a_2 * t_1 + v_1$$

et

$$a_2 = \frac{qU_2}{md_2} \Rightarrow t_2 = (v_2 - v_1) * \frac{md_2}{qU_2}$$

$$\frac{1}{2} m v_2^2 - \frac{1}{2} m v_1^2 = qU_2$$

$$v_2 = \left(\frac{2qU_2}{m} + v_1^2 \right)^{1/2} \Rightarrow v_2 = \left(\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{md_1} (d_1 - \cot q(\theta_p)) \right)^{1/2}$$

$$\Rightarrow t_2 = \frac{md_2}{qU_2} \left[\left(\frac{2qU_2}{md_1} |d_1 - y_p \cot g(\theta_p) y_p| \right)^{1/2} - \left(\frac{2qU_1}{md_1} |d_1 - \cot g(\theta_p) y_p| \right)^{1/2} \right]$$

3. t_s

$$t_S = \frac{y_p}{\sin(\theta_p)v_p}$$

$$TOF = \left(\frac{2md_1}{qU_1} |d_1 - \cot g(\theta_p) y_p| \right)^{1/2} + \frac{md_2}{qU_2} \left[\left(\frac{2qU_2}{md_1} |d_1 - y_p \cot g(\theta_p) y_p| \right)^{1/2} - \left(\frac{2qU_1}{md_1} |d_1 - \cot g(\theta_p) y_p| \right)^{1/2} \right] - \frac{y_p}{\sin(\theta_p) v_p}$$

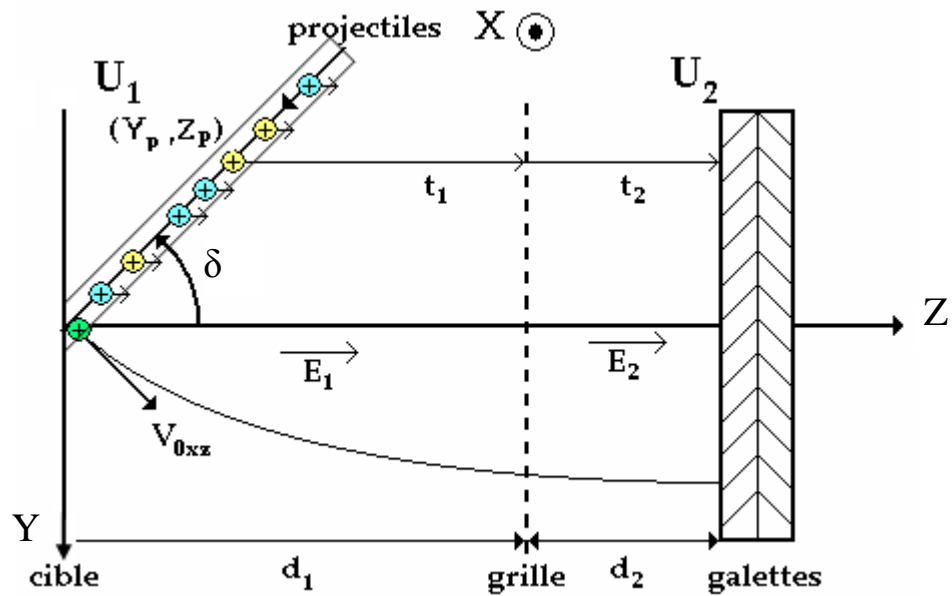


Figure 1: Schéma de l'ionisation du gaz par le faisceau des projectiles

Annexe 2

Expression du temps de vol TOF des ions secondaires

Dans ce paragraphe nous allons nous intéresser à calculer la valeur de temps du vol des ions secondaires.

$$\text{TOF} = t_1 + t_2$$

Avec t_1 le temps de vol entre la surface et la grille (l'ion est soumis au champ E_1) et t_2 celui entre la grille et les galettes (l'ion soumis au champ E_2), figure 2.

1- 2^{ème} loi de newton :

$$F = ma = qE \Rightarrow \frac{d^2x}{dt^2} = q \frac{U}{md} \Rightarrow \frac{dx}{dt} = q \frac{U}{md} t + v_0$$

$$\Rightarrow \begin{cases} v_1 = \frac{qU_1}{md_1} t_1 + v_{0z} \\ v_2 = \frac{qU_2}{md_2} t_2 + v_1 \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} t_1 = \frac{md_1}{qU_1} (\sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - v_{0z}) \\ t_2 = \frac{md_2}{qU_2} (\sqrt{\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2}) \end{cases}$$

2- Théorie d'énergie cinétique :

$$\Delta E_c = \sum W_{ext}$$

$$\frac{1}{2}mv^2 - \frac{1}{2}mv_0^2 = \frac{qU}{d}d$$

$$\Rightarrow \begin{cases} v_1 = \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \\ v_2 = \sqrt{\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \end{cases}$$

En remplaçant v_1 et v_2 par leurs valeurs, nous obtiendrons :

$$\begin{cases} t_1 = \frac{md_1}{qU_1} \left(\sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - v_{0z} \right) \\ t_2 = \frac{md_2}{qU_2} \left(\sqrt{\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \right) \end{cases}$$

Le TOF est donc donné par le suivant :

$$\text{TOF} = \frac{md_1}{qU_1} \left(\sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - v_{0z} \right) + \frac{md_2}{qU_2} \left(\sqrt{\frac{2qU_2}{m} + \frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} - \sqrt{\frac{2qU_1}{m} + v_{0z}^2} \right)$$

Tels que :

$$\begin{cases} m_e = 0.9 \times 10^{-30} \text{ kg} \\ q = 1.6 \times 10^{-19} \text{ C} \\ U_1 = 3 \text{ kV}, U_2 = 2 \text{ kV} \\ d_1 = 103.4 \text{ mm}, d_2 = 12 \text{ mm} \end{cases}$$

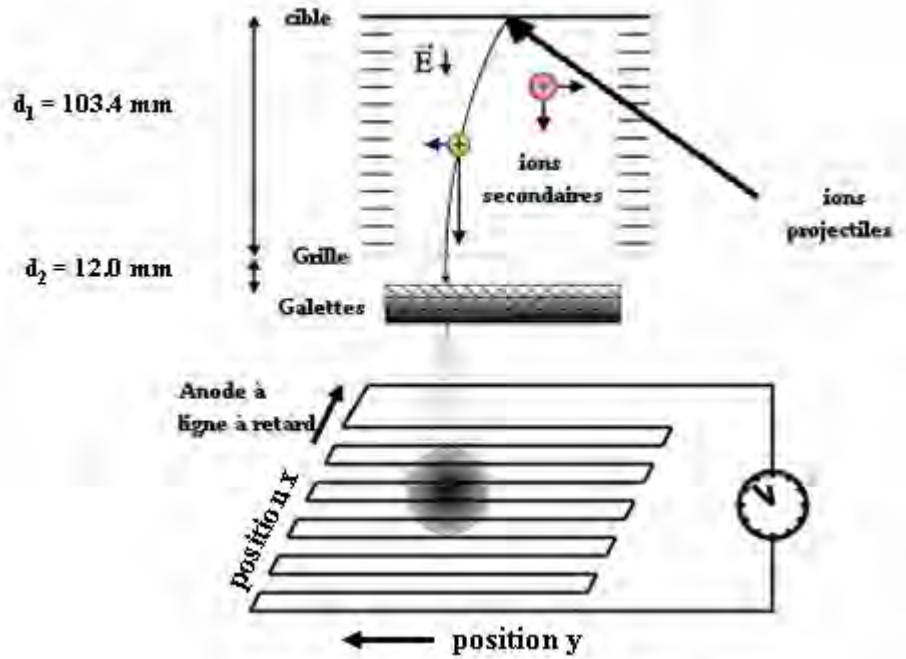


Figure 2 : Schéma du détecteur XY-TOF

Annexe 3

Calcul du vecteur vitesse

Afin de calculer le vecteur vitesse pour un ion donné, il faut sélectionner les bons événements de cet ion. La figure ci-dessous montre un exemple de sélection des bons événements de l'ion ${}^7\text{Li}^+$. Cette sélection est réalisée entre le temps de vol minimal TOF_{\min} (correspondant aux énergies maximales) et le temps de vol maximal TOF_0 ($v_{0z} = 0$) correspondant aux énergies nulles).

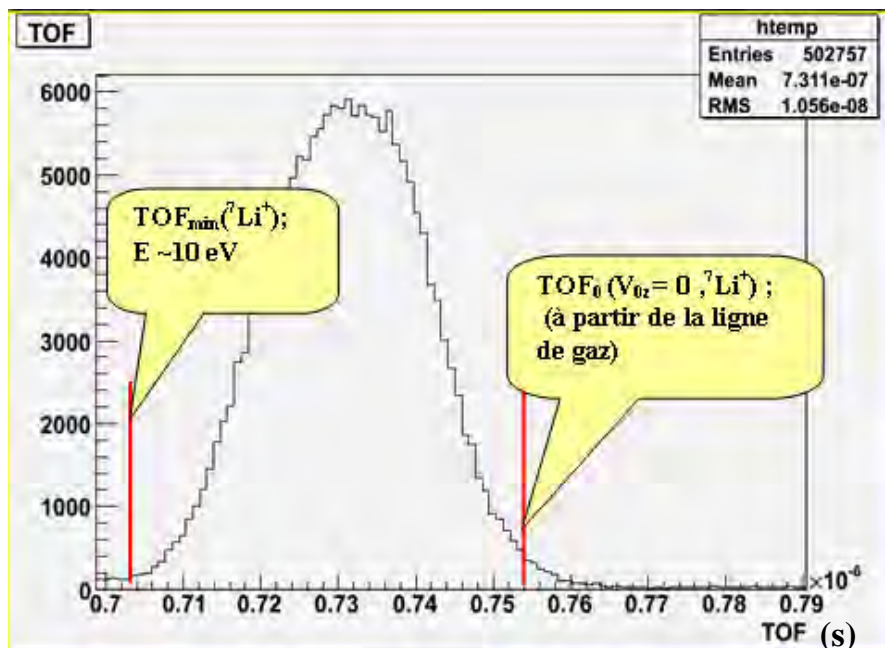


Figure 3 : Sélection des bons événements de l'ion ${}^7\text{Li}^+$.

Le programme « calculvitesse.C » est une routine informatique en C++ qui sert à calculer la distribution en énergie et en angle pour un ion spécifique.

calculvitesse.C

void Vitesse()

```
{
    d1 = 103.4e-3;
    d2 = 12e-3;
    e = 1.6021e-19;
```

```

champ1 = U1/d1;
champ2 = U2/d2;
m = masse*1.661e-27;
acc1 = e/m*champ1;
acc2 = e/m*champ2;

vx = (x/tof);
vy = (y/tof);
v0 = - tof*acc1 + sqrt( 2 * acc1 * d1) + d2 * sqrt(acc1 /2 / d1);

for ( i=0; i<10; ++i)
{
    v1z0 = sqrt( (v0*v0) + ((2*e/m) * U1));
    v2z0 = sqrt( (v1z0*v1z0)+ ((2*e/m) * U2));
    testTOF= (d1 / ((v0 + v1z0)/2)) + (d2 /((v1z0 +v2z0)/2));
    v1 = 1.01 * v0;
    v1z1 = sqrt( (v1*v1) + ((2*e/m) * U1));
    v2z1 = sqrt( (v1z1*v1z1)+ ((2*e/m) * U2));

    if(((v1+v1z1) !=0.0) && ((v1z1+ v2z1) != 0.0)){
        vz = v0;
        mod = vx*vx + vy*vy + vz*vz;
        module = sqrt(mod);
        energie = 0.5*m*(module*module)/e;
        mod = vx*vx;
        module = sqrt(mod);
        ex = 0.5*m*(module*module)/e;
        mod = vy*vy;
        module = sqrt(mod);
        ey = 0.5*m*(module*module)/e;
        mod = vz*vz;
        module = sqrt(mod);
        ez = 0.5*m*(module*module)/e;
        if(vz > 0){
            teta = atan(vt/vz)*TMath::RadToDeg();
            if (vx!=0){
                phi = atan(vy/vx)*TMath::RadToDeg();
            }
            tsinp=teta*sin(phi*TMath::DegToRad());
            tcosp=teta*cos(phi*TMath::DegToRad());

            if((vy > (-0.05*vz)) && (vy < (0.05*vz))){
                tetaper = atan(vx/vz)*TMath::RadToDeg();
            }
            if((vx > (-0.05*vz)) && (vx < (0.05*vz))){
                tetapar = atan(vy/vz)*TMath::RadToDeg();
            }
        }
    }
}

```

Annexe 4

Technique du “catcher”

Les résultats expérimentaux antérieurs concernant la pulvérisation du LiF montrent que la plus grande partie des éjecta sont neutres. Les ions, molécules ou agrégats chargés (positifs ou négatifs) représentent dans le cas du LiF moins de $6 \cdot 10^{-2} \%$ (chapitre 6) du nombre total des particules éjectées. Les premiers travaux ont donc été réalisés sur les particules neutres éjectées avec la méthode du “catcher” (collecteur).

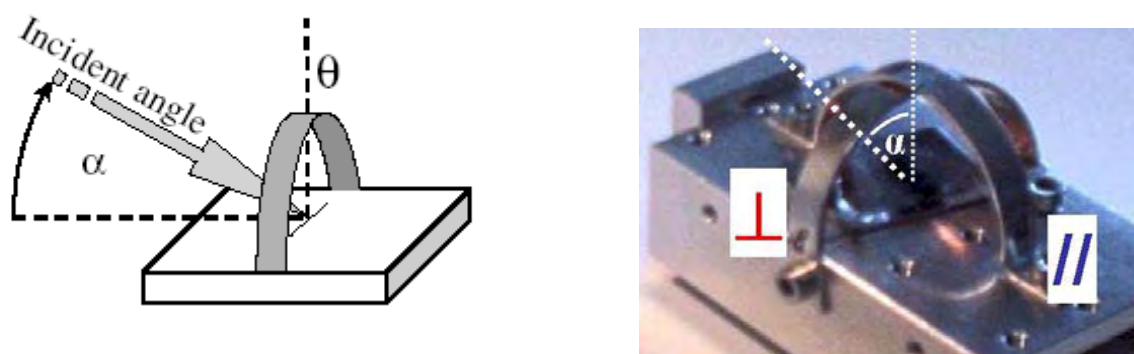


Figure 4 : Schéma du dispositif de collection des particules pulvérisées par la méthode du “catcher”

La figure 4 montre un schéma du système de collection des neutres. Il est composé de deux arcs de cercle sur lesquels une feuille d'Aluminium “ultra pur” est déposée. La matière neutre pulvérisée est donc collectée sur les feuilles qui sont ensuite analysées par ERDA (Elastic Recoil Detection Analysis). Cette analyse permet d'obtenir des distributions angulaires différentielles (dans le plan des arcs) et le rendement total de pulvérisation [Toulemonde 2003, Toulemonde 2002].

Annexe 5

CASP

CASP est un code de calcul de la perte d'énergie électronique des ions rapides ($E/M \gg 25 \text{ keV/u}$) dans la matière. Il comprend : des termes de Bloch (également applicable pour les ions lourds), l'écrantage du projectile, la prédiction de l'état de charge, la charge d'équilibre, la perte d'énergie électrons-projectile et les dépendances des paramètres d'impact pour chaque couche de la cible.

Avec le code CASP, on peut effectuer des calculs rapides de la moyenne de transfert électronique de l'énergie Q_e (due à l'excitation et l'ionisation des atomes de la cible) pour chaque paramètre d'impact b dans une collision. La perte de l'énergie électronique totale S_e (équivalent au pouvoir d'arrêt) est ensuite calculée à partir de $Q_e(b)$. L'estimation de Q_e et de S_e se fait grâce à une fonction écrantée du projectile. En sélectionnant une fonction d'écrantage, il est possible de traiter les phénomènes hors-équilibre de perte d'énergie.

1. P.L. Grande and G. Schiwietz, Phys.Rev. A58, 3796 (1998)
2. G. Schiwietz and P.L. Grande, Nucl. Instr. Meth. B153, 1 (1999)
3. G.M de Azevedo, P.L. Grande, and G. Schiwietz, Nucl. Instr. Meth. B164, 203 (2000)

Annexe 6

Explosion Coulombienne pour les forts S_e

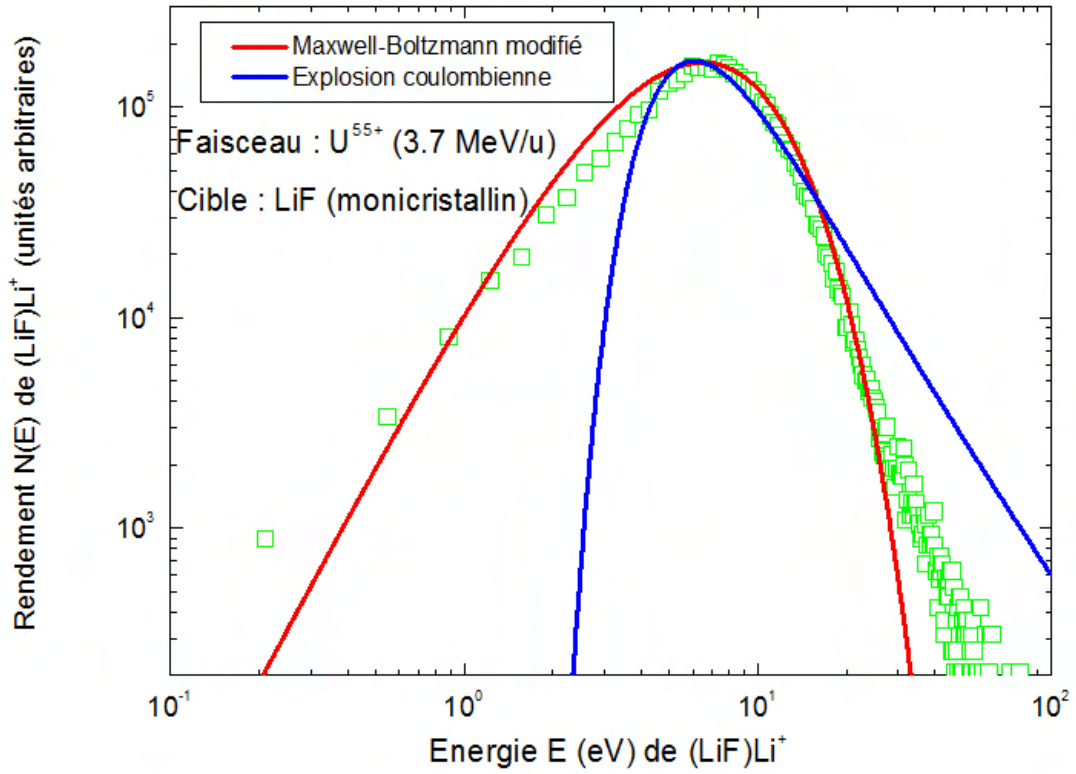


Figure VI-15 : Distribution en énergie du $(LiF)Li^+$ émis du LiF par U^{55+} avec des ajustements de : Maxwell-Boltzmann “modifié” et Explosion coulombienne équation (VI-3).

Bibliographies

- [**Akcöltekin 2009**] : S. Akcöltekin, I. Alzaher, B. Ban-d'Etat, T. Been, P. Boduch, A. Cassimi, H. Hijazi, H. Lebius, B. Manil, J.M. Ramillon, H. Rothard, M. Schleberger, E.F. da Silveira., Nucl. Instr. Meth. B **267**, 649-651 (2009).
- [**Andersen 1985**] : H.H. Andersen, B. Stenum, T. Sørensen and H.J. Whitlow, Nucl. Instr. Meth. B **6**, 459 (1985).
- [**Assmann 2007**] : W. Assmann, M. Toulemonde, C. Trautmann,
“*Sputtering by Particle Bombardment: Experiments and Computer Calculations from Threshold to MeV Energies*” (Springer Topics in Applied Physics),
Rainer Behrisch and Wolfgang Eckstein (Editors),
Springer Verlag (Berlin, New York, Heidelberg), pages 401-448, (2007).
- [**Aumayr 1999**] : F. Aumayr, Comm. At. Mol. Phys. **34**, 201 (1999).
- [**Aumayr 1999**] : F. Aumayr, J. Burgdörfer, P. Varga, HP. Winter, Comm. At. Mol. Phys. **34**, 201 (1999).
- [**Baranov 1988**] : I.A. Baranov, Yu.V. Martynenko, S.O. Tsepelevich and Yu.N. Yavlinskii, Sov. Phys. Usp. **31**, 1015 (1988).
- [**Bethe 1933**] : H. Bethe, Handbuch de physik **14**, 491 (1933)
- [**Beuve 2002**] : M. Beuve, M. Caron, P.D. Fainstein, M. Galassi, B. Gervais, R.D. Rivarola, H. Rothard, Eur. Phys. J. D **21**, 125-135 (2002).
- [**Betz 1994**] : G. Betz, K. Wien, Int. J. Mass Spec. Ion Proc. **140**, 1 (1994).
- [**Biersack 1984**] : J.P. Biersack, W. Eckstein, Appl. Phys. A **34**, 73 (1984).
- [**Biersack 1987**] : J.P. Biersack, Nucl. Instr. Meth. B **27**, 21 (1987)
- [**Bitensky 1987**] : I.S. Bitensky and E.S. Parilis, Nucl. Instr. Meth. B **21**, 26 (1987).
- [**Bolbach 1987**] : G. Bolbach, S. Della Negra, C. Deprun, Y. LeBeyec and K.G. Standing, Rapid. Comm. Mass. Spec. **1**, 22 (1987).
- [**Borovsky 1991**] : J.E. Borovsky, D.M. Suszcynsky, Phys. Rev. A **43**, 1416 (1991).
- [**Borovsky 1991**] : J.E. Borovsky, D.M. Suszcynsky, Phys. Rev. A **43**, 1433 (1991).
- [**Boudjadar 2005**] : S. Boudjadar, F. Haranger, T. Jallowy, A. Robin, B. Ban-d'Etat, T. Been, Ph. Boduch, H. Lebius, B. Manil, Maunary, H. Rothard, Eur. Phys. J. D **32**, 19 (2005).
- [**Bouffard 1998**] : S. Bouffard. J.P. Duraud, M. Mosbah, S. Schlutig, Nucl. Instr. Meth. B **141**, 372 (1998).

- [**Brown 1980**] : W.L. Brown, W.M. Augustiniak, E. Brady, B. Cooper, L.J. Lanzerotti, A. Ramirez, B. Evatt and R.E. Johnson, Nucl. Instr. Meth. B **170**, 321 (1980).
- [**Brown 1993**] : W.L. Brown, in *Ionization in Solids by Secondary Electrons*, R.A. Baragiola (Ed.) (Plenum, 1993).
- [**Caron 2006**] : M. Caron, H. Rothard, M. Toulemonde, B. Gervais, M. Beuve, Nucl. Instr. Meth. B **245**, 36 (2006).
- [**CASP 4.1**] : The CASP 4.1 program is available at <http://www.casp-programme.org>.
- [**Collado 2004**] : V.M. Collado, L.S. Farenzena, C.R. Ponciano, E.F. da Silveira, K. Wien, Surf. Sci. **569**, 149 (2004).
- [**Costa 1927**] : J.L. Costa, Phys. Rev. **30**, 349 (1927).
- [**Czerski 2004**] : K. Czerski, G. Schiwietz, M. Roth, F. Staufenbiel, P. Grande, S. R. Bhattacharyya, Nucl. Instr. Meth. B **225**, 72 (2004).
- [**Danigel 1983**] : H. Danigel, H. Jungclas and L. Schmidt, Int. J. Mass Spec. Ion. Phys. **52**, 223 (1983).
- [**Della-Negra 1990**] : S. Della-Negra, J. Depauw, H. Joret, Y. Le Beyec, I. Bitensky, G. Bolbach, R. Galera, K. Wien, Nucl. Instr. Meth. B **52**, 121 (1990).
- [**Eldridge 1927**] : J.A. Eldridge 1927, Phys. Rev. **30**, 931 (1927).
- [**Espiau 2006**] : R. Espiau de Lamaestre, H. Bernas, Phys. Rev. B **73** (2006) 125317.
- [**Evatt 1980**] : R. Evatt and R.E. Johnson, Radiat. Eff. **52**, 187 (1980).
- [**Fernandez-Lima 2009**] : F.A. Fernandez-Lima, O.P. Vilela Neto, A.S. Pimentel, C.R. Ponciano, M.A.C. Nascimento, E.F. da Silveira, J. Phys. Chem. A **113**, 15031 (2009).
- [**Fernandez-Lima 2009**] : F.A. Fernandez-Lima, O.P. Vilela Neto, A.S. Pimentel, C.R. Ponciano, M.A.C. Nascimento, E.F. da Silveira, J. Phys. Chem. A **113**, 1813 (2009).
- [**Fleischer 1967**] : R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, Phys. Rev. **156**, 353 (1967).
- [**Fenyö 1990**] : D. Fenyö, B.U.R Sundqvist, B.R. Karlson, R.E. Johnson, Phys. Rev. B **42**, 1895 (1990).
- [**Firsov 1959**] : O.B. Firsov, Sov. Phys. JETP **9**, 1076 (1959).
- [**Grandin 1988**] : G. P. Grandin, D. Hennecart, X. Husson, D. Lecler, I. Lesteven-Vaisse and D. Lisfi, Europhys. Lett., **6** (8), 683-688 (1988).
- [**Gerhard 1975**] : W. Gerhard, Z. Phys. B **22**, 31 (1975).
- [**Guinan 1974**] : M.J. Guinan, J. Nucl. Mater. **53**, 171 (1974).
- [**Guthier 1986**] : W. Guthier, edited by A. Benninghoven, Springer Proc. Phys. **9**, 17 (1986).
- [**Hamamatsu**] : Technical Data Sheet N°T.114, Hamamatsu.
- [**Hamza 1999**] : A.V. Hamza, T. Schenkel, A.V. Barnes, Eur. Phys. J. D **6**, 83 (1999).

- [Hansen 1998]** : C.S. Hansen, W.F. Calaway, B.V. King and M.J. Pellin, Energy and yield distributions of calcium atoms and clusters undergoing 4 keV Ar⁺ ion bombardment. *Surf. Sci.* **398**, 211-220 (1998).
- [Håkansson 1982]** : P. Håkansson and B. Sundqvist, *Nucl. Instr. Meth.* **198**, 43 (1982).
- [Håkansson 1982]** : P. Håkansson, I. Kamensky and B. Sundqvist, *Surf. Sci.* **116**, 302 (1982)
- [Haranger 2003]** : F. Haranger, Thèse de l'université de Caen (2003).
- [Haranger 2006]** : F. Haranger, B. Ban-d'Etat, Ph. Boduch, S. Bouffard, H. Lebius, L. Maunary, and H. Rothard. *Eur. Phys. J. D* **38**, 501-506 (2006).
- [Hayashiuchi 1977]** : Y. Hayashiuchi, Y. Kitazoe, T. Sekia and Y. Yamamura, *J. Nucl. Mater.* **71**, 181 (1977).
- [Hedin 1987]** : A. Hedin, P. Håkansson, M. Salehpour and B.U.R. Sundqvist, *Phys. Rev. B* **35**, 7377 (1987).
- [Hijazi 2011]** : H. Hijazi, H. Rothard, P. Boduch, I. Alzaher, F. Ropars, A. Cassimi, J.M. Ramillon, T. Been, B. Ban-d'Etat, H. Lebius, L.S. Farenzena, E.F da Silveira. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B* **269**, 1003-1006 (2011).
- [Hijazi 2011]** : H. Hijazi, L. S. Farenzena, H. Rothard, P. Boduch, P. L. Grande and E. F. da Silveira, *Eur. Phys. J. D.* (2011).
- [Huber 1998]** : H. Huber et al., *Nucl. Instr. Meth. B* **146**, 309 (1998).
- [Husinsky 1979]** : W. Husinsky and R. Bruckmüller, *Surf. Sci.* **80**, 637 (1979).
- [Husinsky 1993]** : W. Husinsky, G. Nicolussi and G. Betz, Energy-distributions of sputtered metal Al-clusters. *Nucl. Instr. Meth. B* **82**, 323-328 (1993).
- [Itoh 1987]** : N. Itoh, *Nucl. Instr. Meth. B* **27**, 155 (1987).
- [Iza 2005]** : P. Iza, R. Sigaud, L.S. Farenzena, C.R. Ponziano, E.F. da Silveira, *Braz. J. of Phys.* **35**, 921 (2005).
- [Jaloway 2002]** : T. Jaloway, R. Neugebauer, K.O. Groeneveld , C.R Ponciano, L.S. Farenzena and E.F. da Silveira, *Rev. of Scientific* **73**, 3187-3192 (2002).
- [Jaloway 2004]** : T. Jaloway, Th. Weber, R. Dorner L. Farenzena, V. Collado, E.F. da Silveira, H. Schmidt-Böcking, K.O. Groeneveld, *Inter. J. of Mass Spec.* **231**, 51-58 (2004).
- [Jeronymo 1993]** : J.M.F. Jeronymo, E.F. da Silveira, R.R. Pinho, C.V. Barros Leite, G.B. Baptista and A.C.M. Gonçalves. *Int. J. of Mass Spec. Ion Proc.* **126** (1993) 59.
- [Johnson 1993]** : R.E. Johnson, in *Ionization of Solids by Heavy Particles*, R.A. Baragolia (Ed.) (Plenum, 1993).
- [Johnson 1982]** : R.E. Johnson et al., *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* **198**, 103 (1982).
- [Johnson 1987]** : R.E. Johnson, *Int. J. Mass. Spec. Ion Proc.* **78**, 357 (1987).

- [**Johnson 1987**] : R.E. Johnson, B. Sundqvist, P. Håkansson, A. Hedin, M. Salehpour and G. Saeve, *Surf. Sci.* **179**, 187 (1987).
- [**Johnson 1989**] : R.E. Johnson, B.U. Sundqvist, A. Hedin, D. Fenyö, *Phys. Rev. B* **40**, 49 (1989).
- [**Jung 1997**] : M. Jung, thèse de l'université de Caen (1997).
- [**Kerms 2005**] : M. Kerms, J. Zirbel, M. Thomason, and R. D. DuBois; *Rev. Scien. Instr.* **76**, 093305 (2005).
- [**Kitazoe 1981**] : Y. Kitazoe, N. Hiraoka, Y. Yamamura, *Surf. Sci.* **111**, 381 (1981).
- [**Koyama 1982**] : A. Koyama, T. Shikata, H. Sakairi, E. Yagi, *J. of Appl. Phys.* **21**, 1216-1221 (1982).
- [**Können 1974**] : G.P. Können, A. Tip and A.E. de Vries, *Rad. Eff.* **21**, 269 (1974).
- [**Koumeir 2008**] : Charbel Koumeir, Thèse de l'université Claude Bernard Lyon 1 (2008).
- [**Lehmann 1997**] : Chr. Lehmann, *Interaction of Radiation with solids and Elementary Defect production*, North-Holland publishing Company, (1997).
- [**Lenoir 2007**] : J. Lenoir, P. Boduch, H. Rothard, B. Ban-d'Etat, T. Been, A. Cassimi, T. Jalowy, H. Lebius, B. Manil, J.M. Ramillon. *Nuc. Instr. Meth. Phys. Res. B* **258**, 178-182 (2007).
- [**Lesueur 1993**] : D. Lesueur and A. Dunlop, *Rad. Eff. and Def.* **126**, 163 (1993).
- [**L'Hoir 2009**] : A. L'Hoir, C. Koumeir, S. Della Negra, P. Boduch, P. Roussel-Chomaz, A. Cassimi, M. Chevallier, C. Cohen, D. Dauvergne, M. Fallavier, D. Jacquet, B. Manil, J.-C. Poizat, C. Ray, H. Rothard, D. Schmaus, M. Toulemonde, *Nucl. Instr. Meth. B* **267**, 876 (2009).
- [**Lin 1983**] : S.H. Lin, I.S.T. Tsong, A.R. Ziv, M. Szymoński and C.M. Loxton, *Phys. Scripta T* **6**, 106 (1983).
- [**Lindhard 1961**] : J. Lindhard, *J. Exp. Theor. Phys. Rev.* **124**, 128 (1961).
- [**Macfarlane 1976**] : R. D. Macfarlane, D. F. Torgerson, *Sci.* **191**, 920-925 (1976).
- [**Macfarlane 1986**] : R. Macfarlane, J.C. Hill, D.L. Jacobs, *J. Trace, Microscopy Technol* **4**, 281 (1986).
- [**Matsuda 1986**] : Y. Matsuda, Y. Yamamura, Y. Ueda, K. Uchino, K. Muraoka, M. Maeda and M. Akazaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **24**, 8 (1986).
- [**Martinez 2006**] : R. Martinez, C.R. Ponciano, L.S. Farenzena, P. Iza, M.G.P. Homem, A. Naves de Brito, K. Wien, E.F. da Silveira, *Int. J. Mass Spec.* **253**, 112 (2006).
- [**Mieskes 1999**] : H.D. Mieskes, *Dissertation der Fakultät für Physik der Ludwig-Maximilians-Universität München* (1999).
- [**Mieskes 2003**] : H. D. Mieskes W. Assmann, and F. Gru'ner, *Phys. Rev. B* **67**, 155414 (2003).

- [**Moshhammer 1991**]: R. Moshhammer, Thesis, Institute of Nuclear Physics, Technische Hochschule Darmstadt (1991).
- [**Neidhart 1995**] : T. Neidhart, F. Pichler, F. Aumayr, HP. Winter, M. Schmid, P. Varga, Phys. Rev. Lett. **74**, 5280 (1995).
- [**Neugebauer 2003**] : R. Neugebauer, T. Jalowy, J.A.M. Pereira, E.F. da Silveira, H. Rothard, M. Toulemonde, K.O. Groeneveld, Nucl. Instr. Meth. B **209**, 62 (2003).
- [**Overeijnder 1978**] : H. Overeijnder, M. Szymonski, A. Haring and A.E. de Vries, Rad. Eff. **36**, 63 (1978).
- [**Pereira 1997**] : J.A.M. Pereira, C.S.C. de Castro, J.M.F. Jeronymo, C.R. Ponciano, E.F. da Silveira, Wien, K. Nucl. Instr. Meth. B **129**, 21, (1997).
- [**Pereira 1997**] : J.A.M. Pereira, E.F. da Silveira, K. Wien, Rad. Eff. Def. **142**, 247 (1997).
- [**Pereira 1997**] : J.A.M. Pereira, E. F. da Silveira, Surf. Sci. **390**, 158 (1997).
- [**Pilling 2010**] : Pilling, E. Seperuelo Duarte, E. F. da Silveira, E. Balanzat, H. Rothard, A. Domaracka and P. Boduch, Astron. & Astrophys. A **87**, 509 (2010).
- [**Qiu 1982**] : Y. Qiu, J.E. Griffith and T.A. Tombrello, Rad. Eff. **64**, 111 (1982).
- [**Reimann 1993**] : C.T. Reimann, Matematisk-fysiske Meddelelser **43**, 351 (1993).
- [**Rehn 2001**] : E. Rehn, R.C. Birtcher, S.E. Donnelly, P.M. Baldo, L. Funk, Phys. Rev. Lett. **87**, 207601 (2001).
- [**Rutherford 1911**] : E. Rutherford, E. Phil. Mag. **21**, 669 (1911).
- [**Säve 1987**] : G. Säve, P. Håkansson, B.U.R. Sundqvist and U. Jonsson, Nucl. Instr. Meth. B **26**, 571 (1987).
- [**Säve 1987**] : G. Säve, P. Håkansson, B.U.R. Sundqvist, R.E. Johnson, E. Söderströms, E. Lindqvist and J. Berg, App. Phys. Lett. **51**, 1379 (1987).
- [**Schenkel 1998**] : T. Schenkel, A.V. Barnes, A.V. Hamza, D.H. Schneider, J.C. Banks and B.L. Doyle, Phys. Rev. Letters **80**, 4325 (1998).
- [**Schiwietz 1996**] : G. Schiwietz, G. Xiao, Nucl. Instr. Meth. B **107**, 113-127 (1996).
- [**Schlutig 2001**] : S. Schlutig, Thèse de l'université de Caen (2001).
- [**Schmitt 1966**] : H. W. Schmitt, J. H. Neiler, and F. J. Walter, Phys. Rev. **141**, 1146-1160 (1966).
- [**Sigmund 1969**] : P. Sigmund, Phys. Rev. **184**, 383 (1969).
- [**Sigmund 1981**] : P. Sigmund, C. Clausen, J. Appl. Phys. **52**, 990 (1981).
- [**Sigmund 1981**] : P. Sigmund, in *Sputtering By Partile Bombardement I*, R. Berich (Ed.), Topics in Applied Physics, Vol. 47 (Springer, Berlin, 1981).
- [**Sigmund 1984**] : P. Sigmund, M. Szymonski, Appl. Phys. A **33**, 152 (1984).

- [**Sporn 1997**] : M. Sporn, G. Libiseller, T. Neidhart, M. Schmid, F. Aumayr, HP. Winter, P. Varga, M. Grether, D. Niemann, N. Stolterfoht, Phys. Rev. Lett. **79**, 945 (1997).
- [**Staudt 2002**] : C. Staudt, A. Wucher, Phys. Rev. B **66**, 075419 (2002).
- [**Staufenbiel 2005**] : F. Staufenbiel, G. Schiwietz, K. Czerski, M. Roth, P.L. Grande, Nucl. Instr. Meth. B **230**, 426 (2005).
- [**Sunner 1988**] : J. Sunner, A. Morales and P. Kebarle, Int. J. of Mass Spec. Ion Proc. **86**,169 (1988).
- [**Szymoński 1978**] : M. Szymoński, A. Haring and A.E. de Vries, Rad. Eff. **36**, 189 (1978).
- [**Takeuchi 1983**] : W. Takeuchi, Y. Yamamura, Rad. Eff. **71**, 53 (1983).
- [**Tarisien 2003**] : Mehdi Tarisien, Thèse de l'université de Caen (2003).
- [**Thompson 1987**] : M.W. Thompson, Nucl. Instr. Meth. B **18**, 411 (1987).
- [**Toulemonde 2000**] : M. Toulemonde, Ch. Dufour, A. Meftah and E. Paumier, Nucl. Instr. Meth. B **166**, 903 (2000).
- [**Toulemonde 2002**] : M. Toulemonde, W. Assmann, C. Trautmann, F. Gruner, Phys. Rev. Lett. **88**, 057602 (2002).
- [**Toulemonde 2003**] : M. Toulemonde, W. Assmann, C. Trautmann, F. Gruner, H.D. Mieskes, H. Kucal, Z.G. Wang, Nucl. Instr. Meth. B **212**, 346 (2003).
- [**Urbassek 1984**] : H.M. Urbassek, P. Sigmund, Appl. Phys. A **35**, 19 (1984).
- [**Urbassek 1987**] : H.M. Urbassek and J. Michl, Nucl. Instr. Meth. B **22**, 480 (1987).
- [**Urbassek 1988**] : H.M. Urbassek, Nucl. Instr. Meth. B **31** (1988) 541.
- [**Urbassek 1991**] : H.M. Urbassek and K.T. Waldeer, Phys. Rev. Lett. **67**, 105 (1991).
- [**Von Smoluchowski 1916**] : M. von Smoluchowski , Phys. Z. **17**, 585 (1916).
- [**Wahl 1994**] : M. Wahl and A. Wucher, photoionization of sputtered neutral silver clusters, Nucl. Instr. Meth B **94**, 36-46, (1994).
- [**Waligorski 1986**] : M.P.R. Waligorski et al., Nucl. Track. Rad. Meas. **11**, 309 (1986).
- [**Wien 1987**] : K. Wien, O. Becker, W. Guthier, S. Della-Negra, Y. Le Beyec, B. Monart, K. Standing, G. Maynard, C. Deutsch, Int. J. of Mass Spec. Ion Proc. **78**, 273 (1987).
- [**Wien 1995**] : K. Wien, Ch. Koch, Nguyen van Tan, Nucl. Instr. Meth. B **100**, 322-330 (1995).
- [**Wucher 1996**] : A. Wucher, M. Wahl, Nucl. Instr. Meth. B **115**, 581 (1996).
- [**Yamamura 1982**] : Y. Yamamura, Nucl. Instr. Meth. B **194**, 515 (1982).
- [**Ziegler 1985**] : J.F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, in "The stopping and ranges of ions in solids", vol. 1, Pergamon press, New York (1985).
- [**Ziv 1983**] : A.R. Ziv, B.V. King, S.H. Lin and I.S.T. Tsong, Nucl. Instr. Meth. **218**, 742 (1983).

Interaction ions-surfaces : étude de la pulvérisation du fluorure de lithium LiF par technique d'imagerie XY-TOF-SIMS

RÉSUMÉ

Le dépôt d'énergie cinétique d'un projectile rapide dans une cible conduit à l'éjection de matière sous forme d'atomes ou d'agrégats ("pulvérisation"). La mesure des rendements, des distributions en énergie et en angle des particules pulvérisées contribuent à comprendre le processus microscopique de l'endommagement et de la création de défauts dans les matériaux. Un nouveau dispositif expérimental ultra vide (AODO) permet de mesurer les distributions en masse et les vecteurs vitesse de chaque ion secondaire émis par technique d'imagerie XY-TOF-SIMS ("Secondary Ion Mass Spectroscopy"). Ici, nous nous intéressons à la pulvérisation du fluorure de lithium (isolant cristallin "modèle" à gap très important ≈ 14 eV) irradié par des ions lourds rapides (≈ 10 MeV/u). En fonction du pouvoir d'arrêt S_e , deux régimes de l'évolution des rendements de pulvérisation Y des ions secondaires sont observés. Pour les faibles S_e (≤ 8 keV/nm), régime de faible perturbation, $Y \sim S_e^2$. Pour les forts S_e (> 8 keV/nm), régime de forte perturbation, une saturation ($Y = \text{constante}$) est observée. Les données expérimentales permettent aussi de tester des modèles théoriques proposés dans la littérature (le modèle de l'onde de choc, pointe thermique, explosion coulombienne...). Il apparaît qu'aucun de ces modèles ne peut interpréter correctement l'ensemble de ces résultats. Une distribution de type Maxwell-Boltzmann décrit bien les distributions en énergie des ions secondaires. Les processus générant la pulvérisation doivent donc être principalement d'origine thermique.

Interaction of ions with surfaces: sputtering of secondary ions from lithium fluoride LiF studied by XY-TOF-SIMS

ABSTRACT

The deposition of energy lost by a fast ionic projectile in the target leads to the ejection of material in the form of atoms or clusters ("sputtering"). The measurements of yields, energy and angular distributions of sputtered particles contribute to the understanding of the initial microscopic processes of damage and defect creation in materials. A new UHV system (AODO) allows measuring the mass distributions and the velocity vectors of each emitted secondary ion by means of time-of-flight and imaging techniques XY-TOF-SIMS ("Secondary Ion Mass Spectroscopy") with well prepared target surfaces. Here, we focus on the sputtering of lithium fluoride (an ionic crystal, a large band gap insulator ≈ 14 eV) by fast heavy ions (≈ 10 MeV/u). As a function of the electronic stopping power S_e , two regimes for the evolution of secondary ions yield Y with S_e are observed. At low S_e (≤ 8 keV/nm), weak perturbation regime, $Y \sim S_e^2$. At high S_e (> 8 keV/nm), strong perturbation regime, a saturation ($Y = \text{constant}$) is observed. The experimental data permit also to test the theoretical models existing in the literature (shock wave model, thermal spike, Coulomb explosion ...). It appears that none of these models can correctly describe the ensemble of the experimental observations. However, the Maxwell-Boltzmann distribution describes the energy distributions of the emitted ions. This gives us a possible indication that the processes generating the sputtering could be mainly of thermal origin.

MOTS CLES : Ions multichargés/ Surfaces (Physique ; Isolants Electriques)/ Pulvérisation/ Spectrométrie de Masse des Ions Secondaires/ Couches Minces/ UltraVide

DISCIPLINE : Milieux denses, Matériaux et Composants

LABORATOIRE : CIMAP-GANIL

Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique
Boulevard Henry Becquerel, BP 5133, 14070 Caen, Cedex 05, France